出願人又は代理人



| 今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) |

PCT

#### 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

の書類記号 DOO-I-184-CT1	及び下記5を参照すること。					
国際出願番号 PCT/JP00/07868	国際出願日(日.月.年)	08. 11. 00 .	優先日 (日.月.年)	28. 12. 99		
出願人(氏名又は名称)	出願人 (氏名又は名称) ダイキン工業株式会社					
国際調査機関が作成したこの国際調査 この写しは国際事務局にも送付される		·規則第41条(PC	T18条) の規定に従い	出願人に送付する。		
この国際調査報告は、全部で3	ページであ	<b>る</b> 。				
この調査報告に引用された先行技	技術文献の写し 	.も添付されている 	•			
1. 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。  □ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。						
b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。 <ul><li>この国際出願に含まれる書面による配列表</li></ul>						
□ この国際出願と共に提出さ	□ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表					
□ 出願後に、この国際調査機	□ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表					
□ 出願後に、この国際調査機						
│ 出願後に提出した書面によ 書の提出があった。	□ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述					
●の促出があった。						
2. 計求の範囲の一部の調査ができない(第 I 欄参照)。						
3. □ 発明の単一性が欠如している(第Ⅱ欄参照)。						
4. 発明の名称は 🗵 出席	頭人が提出した	ものを承認する。				
□ 次	こ示すように国	]際調査機関が作成	こした。 <sub>, .</sub>			
<u>-</u>			<u> </u>	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
5. 要約は 🛛 🗓 出版	頭人が提出した	ものを承認する。	•			
I I	祭調査機関が作		、この国際調査報告の発	.則38.2(b)) の規定により 送の日から1カ月以内にこ		
6. 要約書とともに公表される図は、 第1 図とする。 □ 出版		: おりである。	なり	L		
出	<b>類人は図を示さ</b>	なかった。				
X 本[	図は発明の特徴	女を一層よく表して	いる。			

.

Α.	発明の属する分野の分類	(国際特許分類	(IPC)	)
11.	70.01*2 /40 1 20 21 21 42 21 22	\   □□   □   □   □   □   □   □   □   □	\ 1 \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \	•

Int. Cl. ' C 0 1 B 3 / 3 2

#### B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl. ' C 0 1 B 3 / 3 2 - C 0 1 B 3 / 4 8

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1926-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2001年

日本国登録実用新案公報

1994-2001年

日本国実用新案登録公報

1969-2001年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献					
引用文献の		関連する			
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号			
Х	JP, 59-73403, A(松下電器産業株式会社)25.4月.1984(25.04.84)	1-4, 6, 7, 9-			
	特許請求の範囲,図面(ファミリーなし)	15, 19, 21			
Y		5, 8, 20, 21			
Α .		16-18			
X	JP, 10-106606, A(三洋電機株式会社)24.4月.1998(24.04.98), 特許	1-4, 6, 7, 9-			
	請求の範囲,【0058】(ファミリーなし)	15, 19			
Y		5, 8, 20, 21			
X	EP, 600621, A1 (ROLLS-ROYCE AND ASSOCIATES LIMITED) 8.6月.1994	1-3, 10, 11			
	(08.06.94) 全文 & JP,6-239601,A 全文 & US,5458857,A & DE,693				
	09862, A & CA, 2109655, A				

#### 区欄の続きにも文献が列挙されている。

┃ ┃ パテントファミリーに関する別紙を参照。

- \* 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

「&」同一パテントファミリー文献

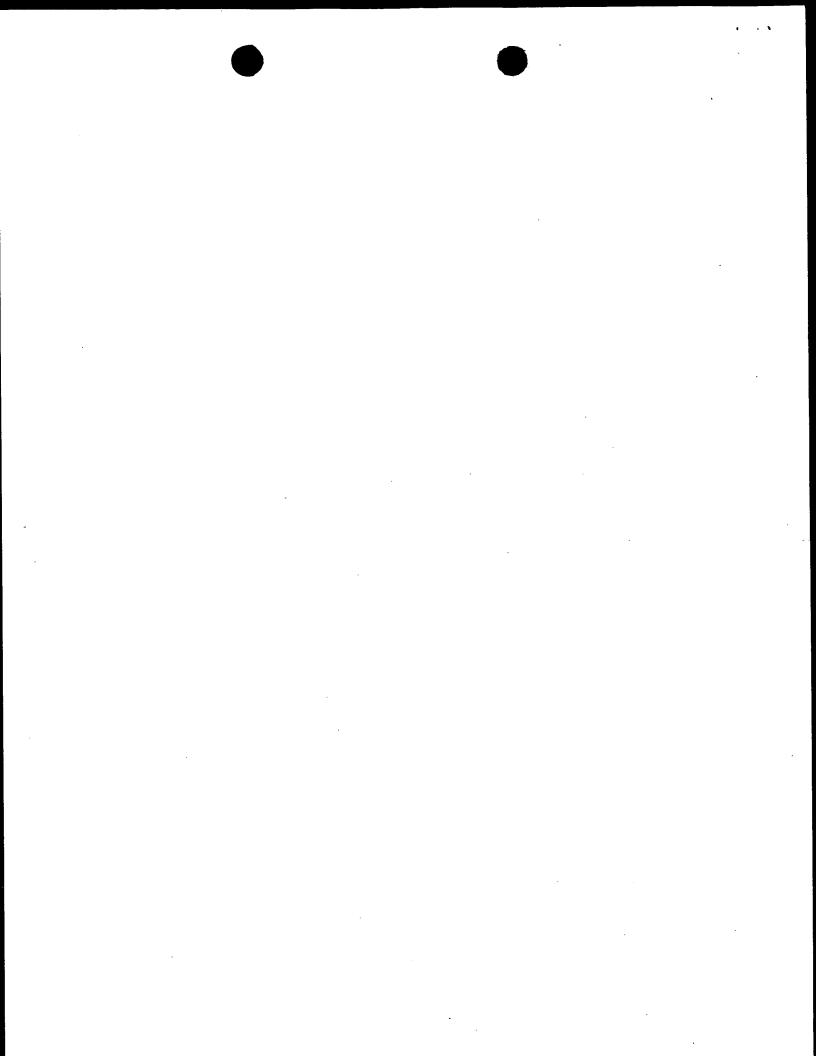
 国際調査を完了した日
 06.02.01
 国際調査報告の発送日
 20.02.01

 国際調査機関の名称及びあて先日本国特許庁(ISA/JP)郵便番号100-8915
 特許庁審査官(権限のある職員) 安務美佐子
 4 G 9439

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

. .

	好且 <b>树</b>	国际山殿银号 (17 ] P (1	0/0/868
C(続き).	関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときに	は、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 52-11058, U(トョタ自動車株式会社) 26. 1月 実用新案登録請求の範囲、第5頁第1行-第7] (ファミリーなし)	5	
Y	JP, 60-181588, A(日産自動車)17.9月.1985( し)	8	
Y	US,5030440,A(Imperial Chemical Industr (09.07.91)全文 & JP,2-69301,A 全文 & 05891,T & GB,8817480,A & DK,363489,A & 3212,A	20	
		· ·	



#### (12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



# ) CERT BURKER I I CERT BURKER I CERT I CONTROL I C

### (43) 国際公開日 2001 年7 月5 日 (05.07.2001)

**PCT** 

## (10) 国際公開番号 WO 01/47800 A1

(51) 国際特許分類7:

\_\_\_\_\_

C01B 3/32

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/07868

(22) 国際出願日:

2000年11月8日(08.11.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ: 特願平11-373618

1999年12月28日 (28.12.1999) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ダイキン 工業株式会社 (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒530-8323 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅田センタービル Osaka (JP).

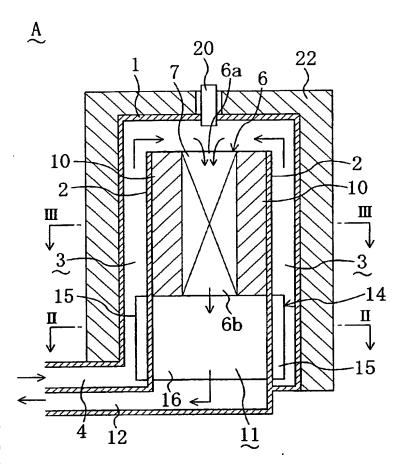
(72) 発明者; および

- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 岡本康令 (OKAMOTO, Yasunori) [JP/JP]. 松井伸樹 (MATSUI, Nobuki) [JP/JP]. 池上周司 (IKEGAMI, Shuji) [JP/JP]. 米本和生 (YONEMOTO, Kazuo) [JP/JP]. 大久保英作 (OKUBO, Eisaku) [JP/JP]. 大上 功 (OHGAMI, Isao) [JP/JP]; 〒591-8511 大阪府堺市金岡町1304番地 ダイキン工業株式会社 堺製作所 金岡工場内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 前田 弘, 外(MAEDA, Hiroshi et al.); 〒 550-0004 大阪府大阪市西区靱本町1丁目4番8号 太平ビル Osaka (JP).

[毓葉有]

(54) Title: DEVICE FOR MODIFICATION THROUGH PARTIAL OXIDATION

(54) 発明の名称: 部分酸化改質装置



A device for modification (57) Abstract: through partial oxidation having a reforming part (6) which forms a hydrogen-rich reformed gas formed from a raw material gas by reactions including partial oxidation, wherein the modification device (A) has a double wall structure composed by a housing (1) and, disposed therein, a partition wall (2), (2), the reforming part (6) is provided within the partition wall (2), (2), and the space between the housing (1) and the partition wall (2) is utilized as a passage (3) for the raw material gas, thereby the passage (3) for the raw material gas being arranged around the reforming part (6). The thermal insulation of the reforming part (6) by the passage (3) for the raw material gas reduces the nonuniformity of temperature in the reforming part (6), and the preheating of the raw material in the passage (3) by the reaction heat generated in the reforming part (6) improves the heat efficiency of the modification device (A) through heat recovery. A preheater for the raw material can be arranged between the passage (3) and the reforming part (6) in a combination with them, which also results in a compact structure of the modification device. Thus, thee modification device has a reforming part (6) being reduced in the nonuniformity of temperature, exhibits improved heat efficiency and has a simple and compact structure.

## WO 01/47800 A1



- (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

#### 添付公開書類:

- 国際調査報告書
- --- 補正書・説明書

(57) 要約:

改質反応部(6)において原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスを生成する場合に、改質反応部(6)内の温度むらを低減し、かつその熱効率を向上させるとともに、改質装置をシンプルでコンパクトな構造とする目的で、改質装置(A)をハウジング(1)とその内部の隔壁(2),(2)とにより2重壁構造のものとし、その隔壁(2),(2)間に改質反応部(6)を収容し、ハウジング(1)と隔壁(2)との間の空間を原料ガス通路(3)とすることで、改質反応部(6)の周りに原料ガス通路(3)を設ける。改質反応部(6)を原料ガス通路(3)により断熱して改質反応部(6)内の温度むらを低減し、原料ガス通路(3)の原料ガスを改質反応部(6)での反応熱により予熱して、自己熱回収により改質装置(A)の熱効率を向上させ、原料ガスの予熱のための予熱器を原料ガス通路(3)と改質反応部(6)との間に一体的に形成して改質装置の構造のコンパクト化を図る。

### 明細書

### 部分酸化改質装置

## (技術分野)

本発明は、炭化水素系の原料ガスを部分酸化反応により改質して燃料電池等に供給するための水素を生成する部分酸化改質装置に関する。

# (背景技術)

一般に、炭化水素やメタノールを改質して水素を生成することができ、このように 改質によって水素を生成する燃料改質装置は、燃料電池や水素エンジン等に使用する ことができる。

このような改質装置として、従来、例えば特開平11-67256号公報に示されるように、燃料電池システムに組み込まれたものが知られている。この燃料改質装置は、部分酸化反応に対して活性を呈する触媒が充填された燃料改質器を備えており、この燃料改質器に原料ガスを導入して、その部分酸化反応によって水素を発生させるようにしている。

すなわち、部分酸化反応においては、次式に示すように、メタン、酸素及び水を含む原料ガスが部分酸化されて二酸化炭素と水素とに変化するようになっており、その 反応の際に反応熱が生じる。

 $CH_4 + (1/2) O_2 + H_2 O \rightarrow CO_2 + 3 H_2$ 

ところで、この種の改質装置として、管 (ハウジング) の内部に粒状の触媒又はモノリスを充填した構造の改質反応部を有するものがあり、このものでは、例えば800℃程度に昇温する改質反応部の反応熱が熱ロスとして外部に流出し易く、改質反応部内で温度むらが生じて反応効率や熱効率が下がるという問題があった。この反応熱を外部に逃がさないようにするには、管の周りに厚さの厚い断熱材を設ける必要がある。

また、改質反応部での原料ガスの部分酸化反応を促進するために、その改質反応部に供給する原料ガスを所定温度(例えば460°C)に予熱しておく必要があり、その

予熱のために熱交換器からなる予熱器を設ける必要もある。

本発明の目的は、改質装置の構造に工夫を凝らすことで、その改質反応部内の温度 むらを低減し、かつその熱効率を向上させるとともに、改質装置をシンプルでコンパ クトな構造とすることにある。

## (発明の開示)

上記の目的を達成するために、本発明では、改質装置を2重壁タイプのものとし、 その内壁内に改質反応部を、また内壁外側に原料ガス通路をそれぞれ配置するように した。

具体的には、原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスを生成する改質反応部(6)を有する部分酸化改質装置として、上記改質反応部(6)の周りに、改質反応部(6)に対し原料ガスを供給する原料ガス通路(3)を設ける。

こうすると、改質反応部(6)の周りが原料ガス通路(3)により覆われて、改質 反応部(6)が原料ガス通路(3)により断熱されるので、改質反応部(6)内の温 度むらを低減することができる。

また、逆に、上記改質反応部(.6)周りの原料ガス通路(3)の原料ガスが改質反応部(6)での反応熱により加熱されることとなり、改質反応部(6)での反応熱を原料ガスの予熱のために回収して、この自己熱回収により改質装置の熱効率を向上させることができる。

しかも、このように改質反応部(6)の反応熱により改質反応部(6)周りの原料ガス通路(3)の原料ガスが加熱されるので、その原料ガスを予熱するための予熱器が原料ガス通路(3)と改質反応部(6)との間に一体的に形成されることとなり、改質装置の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

また、本発明では、原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガス を生成する改質反応部(6)を有する部分酸化改質装置として、上記改質反応部

- (6) の出口部 (6b) に連通する改質ガス通路 (11) の改質ガスと、改質反応部 (2) の1円数 (2-) に連通する改質ガス通路 (2) の 関係 ガストの間で熱な物さ
- (6)の入口部(6a)に連通する原料ガス通路(3)の原料ガスとの間で熱交換させる熱交換器(14)を設ける。

こうすると、上記改質反応部(6)に供給される、原料ガス通路(3)の原料ガス

が改質反応部(6)での反応熱により高温度となった改質ガスと熱交換器(14)での熱交換により加熱されることとなり、改質反応部(6)での反応熱を原料ガスの予熱のために回収して、この自己熱回収により改質装置の熱効率を向上させることができる。

しかも、このように改質反応部(6)の反応熱により原料ガス通路(3)の原料ガスが加熱されるので、その原料ガスを予熱するための予熱器が原料ガス通路(3)と 改質ガス通路(11)との間に一体的に形成されることとなり、改質装置の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

上記改質反応部 (6) と原料ガス通路 (3) とがハウジング (1) 内に一体的に設けられているものとしてもよい。このことで、改質装置の構造をさらにシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

上記改質反応部(6)と原料ガス通路(3)との間の熱移動量を制御する熱移動量制御体(10)を設けることもできる。こうすれば、改質反応部(6)と原料ガス通路(3)の燃料ガスとの間の熱交換量を熱移動量制御体(10)によって適正にコントロールすることができるとともに、この熱移動量の制御により改質反応部(6)での温度むらを低減することができる。

その場合、上記熱移動量制御体(10)は耐火性の断熱材とする。このことで、熱 移動量制御体(10)の具体的構成が容易に得られる。

上記改質反応部(6)の出口部(6b)に連通する改質ガス通路(11)の周りに原料ガス通路(3)を設け、この原料ガス通路(3)の原料ガスと改質ガス通路(11)の改質ガスとの間で熱交換させる熱交換器(14)を設けてもよい。この場合も、熱交換器(14)が上記原料ガスの予熱のための予熱器として原料ガス通路(3)と改質ガス通路(11)との間に一体的に形成されることとなり、改質装置の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

上記熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) 及び改質ガス通路 (11) にそれぞれ臨みかつ各ガス流に沿って延びる伝熱フィン (15), (16) を有するものとするのがよい。こうすると、熱交換器 (14) でのガスの圧力損失を低減できるとともに、熱交換器 (14) をコンパクトにすることができる。

また、上記熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) 及び改質ガス通路 (11) に

それぞれ位置する多孔性固体(24),(25)(例えば金属発泡材や発泡セラミック等)を有するものとすることもできる。このことで、多孔性固体(24),(25)による輻射により熱交換を行うことができ、熱交換器(14)の具体的構成が容易に得られる。

さらに、上記改質反応部(6)、原料ガス通路(3)、改質ガス通路(11)及び 熱移動量制御体(10)をハウジング(1)内に一体的に設けてもよい。このことで、 改質装置の構造をさらにシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

上記改質反応部(6)はハニカム構造のモノリス(7)からなるものとする。このことで、望ましい構造の改質反応部(6)が得られる。

上記原料ガス通路(3)は、原料ガスを混合させる混合器を有するものとする。こうすれば、原料ガスが混合器により混合されて、改質反応部(6)での部分酸化反応が効率よく行われる。

上記熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) の原料ガスと改質ガス通路 (11) の改質ガスとが入口側から出口側に向かって同じ向きに流れる並行流式 (「並流式」ともいう) 熱交換器とするのがよい。

こうすれば、負荷の変動により改質反応部(6)でのガス流量が変化しても、その影響を受けることなく、改質反応部(6)の入口部及び出口部の各ガス温度をそれぞれ略一定に保つことができる。すなわち、熱交換器(14)の熱交換量は同じであるので、原料ガスと改質ガスとが入口側から出口側に向かって逆向きに流れるタイプの熱交換器であると、ガス流量が減少したときに、熱交換量が過度になって入口部の原料ガス温度が上昇し過ぎる一方、出口部の改質ガス温度が下がり過ぎる虞れが生じるが、並流式熱交換器(14)ではそのような問題が生じることはない。

上記伝熱フィン(15),(16)は、波形に折り曲げられているものとする。こうすると、伝熱フィン(15),(16)ないし熱交換器(14)を容易に製造することができる。

また、上記伝熱フィン(15), (16)を周囲壁部に対しろう付けして固定するようにしてもよい。このことで、伝熱フィン(15), (16)と周囲壁部との接触熱抵抗が小さくなり、量産した場合での熱交換性能を安定して確保することができる。

上記伝熱フィン(15),(16)にスリット(17)を形成することもできる。

このことで、各ガス通路(3),(11)が熱交換器(14)における伝熱フィン(15),(16)により伝熱面側とその反対側との2つの通路に区画されていても、両通路のガスがスリット(17)を通して混合されるようになり、反対側通路のガスの熱交換を良好に行うことができるとともに、スリット(17)の角部による前縁効果をも得られ、これらにより熱交換器(14)の熱交換特性を向上させることができる。

上記熱交換器 (14)上流側の原料ガス通路 (3)に、改質反応部 (6)又は熱交換器 (14)の少なくとも一方を離れた状態で取り囲むように該改質反応部 (6)又は熱交換器 (14)から配置された略環状空間からなる熱回収部 (34)を設けてもよい。

このことで、改質反応部(6)又は熱交換器(14)から周辺に逃げる熱を熱回収部(34)で回収して原料ガスを加熱することができ、部分酸化改質装置全体の熱損失を低減して、改質反応部(6)の入口部(6a)での原料ガス温度を改質反応部(6)での触媒反応が良好に維持される温度に保つことができる。

上記熱回収部(34)と改質反応部(6)又は熱交換器(14)との間に熱移動量制御体(22)を介在することもできる。こうすれば、熱回収部(34)と改質反応部(6)又は熱交換器(14)との離間距離を小さくして、熱回収部(34)を設けつつ、部分酸化改質装置をコンパクトにすることができる。

また、上記熱回収部(34)と熱交換器(14)とを1つ又は複数の連通路(32)により連通する。このことで、部分酸化改質装置の構造を簡単にすることができ、しかも、上記熱回収部(34)と改質反応部(6)又は熱交換器(14)との間に介在される熱移動量制御体(22)の挿入を容易に行って部分酸化改質装置の製造の容易化を図ることができる。

上記改質反応部(6)の周りに、改質反応部(6)の出口部(6b)と熱交換器(14)とを連通する改質ガス通路(11)を設けてもよい。

こうすると、改質反応部(6)が周りを改質ガス通路(11)により覆われて該改質ガス通路(11)により断熱されるので、改質反応部(6)内の温度を触媒反応温度に保持することができる。

また、このように改質反応部(6)の出口部(6b)から熱交換器(14)に至る

改質ガス通路(11)が改質反応部(6)周りに一体的に形成されることとなり、改 質装置の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

また、上記改質反応部(6)を第1反応部(43)と、該第1反応部(43)の周りに設けられ、入口部が第1反応部(43)の出口部に連通する第2反応部(44)とに分割して、これら第1及び第2反応部(43)、(44)のガスの流れを逆向きとすることもできる。

この場合も、改質反応部(6)の第1反応部(43)が周りを第2反応部(44)により覆われて断熱されるので、改質反応部(6)内の温度を保持できるとともに、改質反応部(6)自体を2重構造として、改質装置の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

上記の構成において、起動時に原料ガスを加熱する加熱手段(20)を設けることもできる。この構成によれば、改質装置の起動時に限定して原料ガスが加熱手段(20)により予熱されるようになり、改質装置の起動時間を短縮することができる。

#### (図面の簡単な説明)

- 図1は本発明の実施例1に係る部分酸化改質装置を示す断面図である。
- 図2は図1のII-II線断面図である。
- 図3は図1のIIIーIII線断面図である。
- 図4は実施例2を示す図2相当図である。
- 図5は実施例3を示す図3相当図である。
- 図6は実施例4を示す図2相当図である。
- 図7は実施例4の要部を示す断面図である。
- 図8は実施例5を示す改質装置の断面図である。
- 図9は図8のIX-IX線断面図である。
- 図10はスリットを有する伝熱フィンを展開して示す拡大正面図である。
- 図11はスリットを有する伝熱フィンの拡大断面図である。
- 図12は実施例6を示す図8相当図である。
- 図13は実施例7を示す図8相当図である。
- 図14は図13のXIV-XIV線断面図である。

- 図15は実施例8を示す図8相当図である。
- 図16は実施例9を示す図8相当図である。
- 図17は実施例10を示す図8相当図である。
- 図18は実施例11を示す図8相当図である。

# (発明を実施するための最良の形態)

本発明を実施するための最良の形態を実施例として説明する。

### (実施例1)

図1は本発明の実施例1に係る部分酸化改質装置(A)を示し、(1)はその有底角筒状のハウジング(1)で、このハウジング(1)の内部には1対の対向する隔壁(2),(2)がハウジング(1)内を1つの内側空間及び2つの外側空間に区画するように配設され、この隔壁(2),(2)はハウジング(1)と一体に形成されている(図2及び図3参照)。各隔壁(2)においてハウジング(1)底部側(図1で上側)の端部は切り欠かれて上記内側及び外側空間同士が連通しており、この内側及び外側空間の間の連通部と両外側空間自体とが原料ガス通路(3)に構成されている。この原料ガス通路(3)において両外側空間のハウジング(1)開口側(図1で下側)の端部は原料ガス入口(4)とされ、この原料ガス入口(4)は図外の原料ガス管に接続されており、この原料ガス管から供給された原料ガス(都市ガス及び加湿空気を含む)を原料ガス入口(4)を経てハウジング(1)と各隔壁(2)との間の原料ガス通路(3)に供給するようにしている。

上記隔壁(2),(2)間の内側空間においてハウジング(1)底部側には、上記原料ガスを改質して原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスを生成する改質反応部(6)が設けられ、この改質反応部(6)のハウジング(1)底部側の入口部(6a)は上記ハジング(1)底部に対応する原料ガス通路(3)に連通している。すなわち、改質反応部(6)に対し原料ガスを供給する原料ガス通路(3)が改質反応部(6)の周りに部分的に配置され、これら改質反応部(6)と原

上記改質反応部(6)は、図3に示すように隔壁(2),(2)間に装填されたハニカム構造を有するモノリス(7)からなり、このモノリス(7)においてハウジン

料ガス通路(3)とはハウジング(1)内に一体的に設けられている。

グ(1)の軸心方向(図1で上下方向)に貫通する多数の貫通孔がガス通路(8)とされている。上記モノリス(7)は例えばセラミックやアルミニウム等からなり、このモノリス(7)を担体としてPt、Rh、Ruの少なくともいずれか1つからなる貴金属系の触媒が担持されており、このモノリス(7)のガス通路(8)を通過する間に原料ガスが触媒により以下の式のように部分酸化反応して水素リッチな改質ガスに改質されるようになっている。

 $CH_4 + (1/2) O_2 + H_2 O \rightarrow CO_2 + 3 H_2$ 

また、上記隔壁(2),(2)間の内側空間において改質反応部(6)周りの両側には耐火性の断熱材からなる1対の熱移動量制御体(10),(10)が気密充填された状態で配置されており、この各熱移動量制御体(10)により、改質反応部(6)と原料ガス通路(3)との間の熱移動量を制御するようにしている。

一方、隔壁(2),(2)間の内側空間においてハウジング(1)開口側(図1で下側)の空間は上記改質反応部(6)の出口部(6b)に連通する改質ガス通路(11)に形成されており、改質反応部(6)で原料ガスから生成された改質ガスを改質ガス通路(11)に流すようにしている。よって、改質反応部(6)の出口部(6b)に連通する改質ガス通路(11)の周りに上記原料ガス通路(3)が設けられている。また、上記改質反応部(6)、原料ガス通路(3)、改質ガス通路(11)及び熱移動量制御体(10),(10)はハウジング(1)内に一体的に設けられている。尚、上記改質ガス通路(11)におけるハウジング(1)開口側の端部は改質ガス出口(12)とされ、この改質ガス出口(12)は図外の改質ガス管を介して例えば燃料電池等に接続されている。

また、図2に示すように、上記原料ガス通路(3)の原料ガスと改質ガス通路(11)の改質ガスとの間で熱交換させる熱交換器(14)が設けられている。この熱交換器(14)は、各隔壁(2)から原料ガス通路(3)に臨むように互いに平行に突出する複数の原料ガス側伝熱フィン(15),(15),…と、改質ガス通路(11)に臨むように互いに平行に突出する複数の改質ガス側伝熱フィン(16),(16),…とを有する。そして、原料ガス通路(3)は上記複数の原料ガス側伝熱フィン(15),(15),…からなる混合器を有し、この混合器により、改質反応部(6)に供給される原料ガス、つまりその都市ガスと加湿空気とを撹拌して混合させ

るようにしている。

さらに、上記ハウジング(1)の底部には加熱手段としての電気ヒータ(20)がその加熱部をハウジング(1)内の原料ガス通路(3)に臨ませた状態で取り付けられており、改質装置(A)の起動時にこの電気ヒータ(20)を作動させて原料ガスを所定温度まで加熱(予熱)するようにしている。尚、電気ヒータ(20)に代えてグロープラグを設けてもよく、さらには原料ガス自体を着火燃焼させるバーナ等を設けることもできる。また、図1~図3において、(22)はハウジング(1)の周りを断熱のために覆う断熱材である。

したがって、この実施例においては、改質装置(A)の定常運転時、原料ガス管から供給された原料ガス(都市ガス及び加湿空気を含む)が原料ガス入口(4)を経てハウジング(1)内に導入され、そのハウジング(1)と各隔壁(2)との間の原料ガス通路(3)に供給される。この原料ガス通路(3)には熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15),(15),…が臨み、熱交換器(14)の改質ガス側伝熱フィン(16),(16),…は隔壁(2),(2)間の改質ガス通路(11)に臨んでいるので、この熱交換器(14)により原料ガスと改質ガスとが熱交換されて原料ガスが改質ガスの熱を受けて所定温度(例えば460°)に予熱される。また、そのとき、上記熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15),(15),…で構成される混合器により、原料ガスの都市ガスと加湿空気とが撹拌されて混合される。

このようにして改質ガスとの熱交換により予熱された原料ガスは原料ガス通路

(3)をハウジング(1)底部側に流れ、その間に改質反応部(6)の反応熱が熱移動量制御体(10)(断熱材)及び隔壁(2)を経て原料ガスに伝達され、この伝熱により原料ガスがさらに加熱される。

上記原料ガス通路(3)を通過した原料ガスはハウジング(1)底部側の入口部(6a)から改質反応部(6)内に流入して、そのハニカム構造のモノリス(7)におけるガス通路(8)で触媒と反応し、その部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスに改質される。

そのとき、上記混合器により原料ガスの都市ガスと加湿空気とが混合されているので、改質反応部(6)での部分酸化反応が効率よく行われる。

また、上記改質反応部 (6) での反応熱は、後続して原料ガス通路 (3) を流れる

原料ガスに熱移動量制御体(10)及び隔壁(2)を介して伝達される。そして、上記熱移動量制御体(10)により改質反応部(6)とその周囲にある原料ガス通路

(3) との間の熱移動量が制御され、このことで、改質反応部(6)の反応熱が原料ガス通路(3)の燃料ガスを加熱するための熱交換量を適正にコントロールすることができる。逆に、この熱移動量の制御により改質反応部(6)での温度むらを低減して改質反応部(6)での部分酸化反応をさらに効率よく行わせることができる。

上記改質反応部(6)で原料ガスから生成された高温度の改質ガスは改質反応部(6)の出口部(6b)からハウジング(1)開口側の隔壁(2),(2)間の改質ガス通路(11)に流れ、その改質ガス通路(11)から改質ガス出口(12)を介して改質ガス管に送り出され、その後に燃料電池等に供給される。そして、上記改質ガス通路(11)には上記熱交換器(14)の改質ガス側伝熱フィン(16),(16),…が臨んでいるので、この改質ガスの熱が熱交換器(14)により回収されて、後に続いて原料ガス通路(3)を流れる原料ガスに原料ガス側伝熱フィン(15),(15),…を介して伝達される。

この実施例の場合、上記のように、改質反応部(6)の周りに原料ガス通路(3)が設けられているので、改質反応部(6)の周りが原料ガス通路(3)により覆われて、改質反応部(6)が原料ガス通路(3)により断熱されるようになり、このことで改質反応部(6)内の温度むらをさらに低減することができる。

また、逆に、上記改質反応部(6)周りの原料ガス通路(3)の原料ガスが改質反応部(6)での反応熱により加熱されるので、改質反応部(6)での反応熱を原料ガスの予熱のために回収して、この自己熱回収により改質装置(A)の熱効率を向上させることができる。

しかも、このように改質反応部(6)の反応熱により改質反応部(6)周りの原料ガス通路(3)の原料ガスが加熱されるので、その原料ガスを予熱するための予熱器が原料ガス通路(3)と改質反応部(6)との間に一体的に形成されることとなり、改質装置(A)の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

しかも、上記改質反応部(6)と原料ガス通路(3)とはハウジング(1)内に一体的に設けられているので、改質装置(A)の構造をさらにシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

また、上記改質反応部(6)の出口部(6b)に連通する改質ガス通路(11)の 周りに原料ガス通路(3)が設けられていて、この原料ガス通路(3)の原料ガスと 改質ガス通路(11)の改質ガスとが熱交換器(14)により熱交換するので、その 熱交換器(14)は原料ガス通路(3)と改質ガス通路(11)との間に一体的に形 成されたものとなり、改質装置(A)をシンプルでコンパクトな構造にすることがで きる。

さらに、改質反応部(6)、原料ガス通路(3)、改質ガス通路(11)及び熱移動量制御体(10),(10)がハウジング(1)内に一体的に設けられているので、 改質装置(A)の構造をさらにシンプルにしてコストダウンを図ることができる。

また、改質装置(A)の起動時には、電気ヒータ(20)が作動して原料ガス通路(3)内の原料ガスが電気ヒータ(20)により加熱されて、改質反応部(6)の触媒の活性温度まで昇温される。このことで、改質装置(A)の定常運転までの起動時間を短縮することができる。

### (実施例2)

図4は本発明の実施例2を示し(尚、以下の各実施例では、図 $1\sim$ 図3と同じ部分については同じ符号を付してその詳細な説明は省略する)、ハウジング(1)や隔壁(2),(2)等の形状を変更したものである。

すなわち、この実施例では、ハウジング(1)及び隔壁(2)は互いに同心状に配置された円筒状のものとされ、隔壁(2)周囲の環状の外側空間が原料ガス通路

(3)に形成され、内側の空間に改質反応部(6)、熱移動量制御体(10)及び改質ガス通路(11)が設けられている。尚、図示しないが、改質反応部(6)のモノリス(7)は円柱状となり、熱移動量制御体(10)は環状のものとなる。

そして、熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15), (15), …は隔壁(2)の外周面に突設される一方、改質ガス側伝熱フィン(16), (16), …は隔壁(2)内面に改質ガス通路(11)を複数の部分に区画するように突設されている。

したがって、この実施例においても上記実施例1と同様の作用効果を奏することができる。特に、改質反応部(6)及び改質ガス通路(11)の各々の全体の周りに原料ガス通路(3)が配置されているので、改質反応部(6)での温度むらの低減や熱

WO 01/47800 PCT/JP00/07868

効率の向上の効果がさらに有効に得られる。

### (実施例3)

図5は実施例3を示し、改質反応部(6)周りの構造を変えたものである。すなわち、この実施例では、上記実施例1(図1参照)と同様に、ハウジング(1)及び隔壁(2)は角筒状のものとされている。また、改質反応部(6)に対応する隔壁

(2)の周囲にそれ全体を取り巻くように位置する外側空間が原料ガス通路(3)とされ、内側の空間に、角柱状のモノリス(7)を有する改質反応部(6)と、その周りに位置する角筒状の熱移動量制御体(10)とが設けられている。その他の構成は実施例1と同様であり、従って、この実施例でも実施例1と同様の作用効果を奏することができる。

### (実施例4)

図6及び図7は実施例4を示し、上記実施例2では、熱交換器(14)は伝熱フィン(15),(16)を有するものとしているのに対し、原料ガス通路(3)及び改質ガス通路(11)にそれぞれ位置する多孔性固体を有するものとしている。

すなわち、この実施例では、上記実施例2の構成(図4参照)において、原料ガス側伝熱フィン(15), (15), …及び改質ガス側伝熱フィン(16), (16), …は省略され、その代わり、原料ガス通路(3)に例えば金属発泡材や発泡セラミックからなる円筒状の原料ガス側多孔性固体(24)がハウジング(1)の内周面と隔壁(2)の外周面との間にそれぞれ空間(いずれも原料ガス通路(3))をあけて配置されており、この原料ガス側多孔性固体(24)外側の原料ガス通路(3)の原料ガスが多孔性固体(24)を通ってその内側の原料ガス通路(3)に流れるようになっている。

一方、改良ガス通路(11)には同様の改質ガス側多孔性固体(25)が隔壁(2)内周面との間に空間(改質ガス通路(11))をあけて設けられており、この改質ガス側多孔性固体(25)内側の改質ガス通路(11)の改質ガスが多孔性固体(25)を通って外側の改質ガス通路(11)に流れるようになっている。そして、これら多孔性固体(24),(25)による輻射によって原料ガス通路(3)の原料ガスと改質ガス通路(11)の改質ガスとの間で熱交換させるようにしている。その他は実施例2と同様の構成である。よって、この実施例でも実施例2と同様の効果が



得られる。

## (実施例5)

図8は実施例5を示す(尚、この実施例5以下の各実施例つまり実施例5~11において、「上」及び「下」という用語はそれぞれ各図に示す上側及び下側を示す意味で用いており、部分酸化改質装置(A)自体の上下方向を限定するものではない)。この実施例5では、ハウジング(1)は略密閉円筒状のもので、このハウジング(1)内の上端部が改質ガス出口(12)に形成されている。ハウジング(1)内の下部には略密閉円筒状の隔壁(2)が下壁部をハウジング(1)の下壁部との間に隙間をあけた状態で同心状に配置固定されている。隔壁(2)内の空間は入口側仕切壁(27)により上下2つの空間に仕切られ、下側の空間には改質反応部(6)が収容されている。また、隔壁(2)の下壁部及び上記入口側仕切壁(27)にはそれぞれ多数のガス孔(28),(28),…が貫通形成されている。

ハウジング(1)の上部は、下部と同じ位置にある内側壁部(1a)と、この内側壁部(1a)の外周面に間隔をあけた状態で気密状に接合された外側壁部(1b)との2重壁構造に設けられ、両壁部(1a),(1b)間には円環状の空間が形成されている。そして、このハウジング(1)の両壁部(1a),(1b)間の空間は隔壁(2)内の上側空間に対し隔壁(2)上端部とハウジング(1)の内側壁部(1a)との間に両者を気密状に貫通するように架設した連通管(29)内の連通路(30)により連通されている。

一方、ハウジング(1)の外側壁部(1b)の下端部には円周方向に等間隔をあけた位置に複数本(図示例では2本)の連通管(31),(31),…の内端部が貫通した状態で気密状に接合され、この各連通管(31)内の連通路(32)はハウジング(1)の内側及び外側の両壁部(1a),(1b)間の空間の下端部に連通されている。そして、上記各連通管(31)内の連通路(32)、ハウジング(1)の両壁部(1a),(1b)間の空間、連通管(29)内の連通路(30)並びに隔壁(2)内の上側空間により、改質反応部(6)の入口部(6a)に連通する原料ガス通路(3)の下流半部が、またハウジング(1)及び隔壁(2)の各下壁部間の空間並びに隔壁(2)の外周面とハウジング(1)の内周面との間の空間により、改質反応部(6)の出口部(6b)に連通する改質ガス通路(11)がそれぞれ形成されて

おり、後述の熱回収部(34)からの原料ガスを各連通路(32)を経てハウジング(1)の両壁部(1a),(1b)間の空間に供給し、その空間の上端部から連通路(30)を介して隔壁(2)内の上側空間に導入して、入口側仕切壁(27)のガス孔(28),(28),…により改質反応部(6)上端の入口部(6a)に供給する一方、この改質反応部(6)での改質により生成されて出口部(6b)から出た改質ガスを、隔壁(2)下壁部のガス孔(28),(28),…を経て隔壁(2)及びハウジング(1)の各下壁部間の空間、並びに隔壁(2)外周面とハウジング(1)内周面との間の空間を介してハウジング(1)上端の改質ガス出口(12)に供給するようにしている。

上記改質反応部 (6) の出口部 (6b) に連通する改質ガス通路 (11) と、改質 反応部(6)の入口部(6a)に連通する原料ガス通路(3)との間に、該改質ガス 通路(11)の改質ガスと原料ガス通路(3)の原料ガスとの間で熱交換させる熱交 換器 (14) が設けられている。この熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) と改 質ガス通路 (11) とに臨みかつ各々内部のガス流に沿って延びる伝熱フィン (1 5), (16)を有するフィン付熱交換器からなる。すなわち、ハウジング(1)の 内側壁部 (1a) 外周面と外側壁部 (1b) 内周面との間には上記連通路 (30) の 接続位置よりも下側位置に原料ガス通路(3)に臨む原料ガス側伝熱フィン(15) が、また隔壁 (2) 外周面とハウジング (1) の内側壁部 (1a) 内周面との間には 改質ガス通路(11)に臨む改質ガス側伝熱フィン(16)がそれぞれ互いに対応す るように接合固定されている。図9に拡大して示すように、この各伝熱フィン(1 5), (16)は波形に折り曲げられていて、原料ガス側伝熱フィン(15)の各折 曲げ角部はハウジング(1)の外側壁部(1b)内周面及び内側壁部(1a)外周面 に対し、また改質ガス側伝熱フィン(16)の各折曲げ角部は隔壁(2)の外周面及 びハウジング(1)の内側壁部(1a)内周面に対しそれぞれろう付けされて固定さ れている。

以上の構造により、熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) の原料ガスと改質ガス通路 (11) の改質ガスとがいずれも伝熱フィン (15), (16) の入口側 (図8の下側) から出口側 (同上側) に向かって同じ向きに流れる並行流式 (「並流式」ともいう) の熱交換器とされている。また、この熱交換器 (14) と改質反応部

(6) の出口部 (6b) とを連通する部分の改質ガス通路 (11) は改質反応部 (6) の周りに設けられている。

さらに、上記ハウジング(1)の周りには円環状空間からなる熱回収部(34)が 改質反応部 (6) 及び熱交換器 (14) の双方を該改質反応部 (6) 及び熱交換器 (14)から所定寸法離れた状態で取り囲むように配置されている。すなわち、ハウ ジング(1)の周りには略ハウジング(1)の下端から隔壁(2)の上端までの長さ を有する円筒体(35)が同心状に配設されている。この円筒体(35)は互いに同 心状に配置された径の異なる円筒状の内外側壁(35a),(35b)と、両側壁 (35a), (35b)間の円環状空間の上下開口をそれぞれ気密状に閉塞する円環 状の上下壁(35c),(35d)とからなっていて、これら内外側壁(35a), (35b) 及び上下壁 (35c), (35d) に囲まれた空間が熱回収部 (34) に 構成されている。そして、上記内側壁(35a)の略上下中央位置に、上記ハウジン グ(1)の外側壁部(1b)下端部に内端部を接合固定せしめた各連通管(31)の 外端部が貫通状態で接合固定され、一方、外側壁(35b)の下端部は原料ガス入口 管(37)内の原料ガス入口(4)に連通しており、この原料ガス入口(4)から熱 回収部(34)に至る部分により原料ガス通路(3)の上流半部が構成されている。 よって、熱回収部(34)は、熱交換器(14)上流側の原料ガス通路(3)に、改 質反応部(6)及び熱交換器(14)を該改質反応部(6)及び熱交換器(14)か ら離れた状態で取り囲むように設けられている。また、熱回収部(34)と熱交換器 (14) とは複数の並列の連通路(32), (32), …により連通されている。尚、 上記改質反応部(6)と熱回収部(34)との間隔は、例えばハウジング(1)下部 の外径d1が60.5mmのときに円筒体(35)の内側壁(35a)の内径d2が 134.2mmとなるように設定される。

また、上記ハウジング(1)、連通管(31)、円筒体(35)及び原料ガス入口管(37)はいずれもセラミックウール等の熱移動量制御体としての断熱材(22)内に埋設されている。このことで、熱回収部(34)と改質反応部(6)及び熱交換器(14)との間、具体的には円筒体(35)の内側壁(35a)内周面とハウジング(1)外周面との間に熱移動量制御体として機能する断熱材(22)が介在されている。

したがって、この実施例の場合、原料ガス入口(4)に導入された原料ガスは円筒体(35)内の熱回収部(34)に供給された後、この熱回収部(34)から各連通路(32)を介してハウジング(1)の内側及び外側の壁部(1a),(1b)間の空間の下端部に導入される。この空間に導入された原料ガスは熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)の間を通って改質ガスとの熱交換により加熱されながら上端部に向かい、その上端部から連通路(30)を経由して隔壁(2)内の上側空間に供給され、この上側空間から入口側仕切壁(27)のガス孔(28),(28),…を通過して改質反応部(6)に入口部(6a)から導入され、その触媒との部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスに改質される。この改質反応部(6)の出口部(6b)から出た改質ガスは隔壁(2)の下壁部のガス孔(28),(28),…を通ってハウジング(1)及び隔壁(2)の各下壁部間の空間に移動した後、改質反応部(6)に対応する隔壁(2)間りの空間(改質ガス通路(11))を経て上記熱交換器(14)に至り、その改質ガス側伝熱フィン(16)の間を通過して改質ガス出口(12)に供給され、この熱交換器(14)において放熱して原料ガス側伝熱フィン(15)間を流れる原料ガスの加熱に供される。

この場合、上記実施例1と同様に、改質反応部(6)に供給される原料ガス通路(3)の原料ガスが、改質反応部(6)での反応熱により高温度となった改質ガス通路(11)の改質ガスと熱交換器(14)で熱交換されて加熱されるので、改質反応部(6)での反応熱を原料ガスの予熱のために回収して、この自己熱回収により改質装置(A)の熱効率を向上させることができる。

しかも、このように改質反応部(6)の反応熱により原料ガス通路(3)の原料ガスが加熱されるので、その原料ガスを予熱するための予熱器が原料ガス通路(3)と改質ガス通路(11)との間に一体的に形成されることとなり、改質装置(A)の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

また、この実施例においては、上記熱交換器(14)上流側の原料ガス通路(3)に該原料ガス通路(3)の一部をなす円環状空間からなる熱回収部(34)が設けられ、この熱回収部(34)は改質反応部(6)及び熱交換器(14)の周りに離れた状態でそれらを取り囲むように配置されているので、改質反応部(6)及び熱交換器(14)から改質装置(A)の周辺に逃げようとする熱を熱回収部(34)で効率よ

PCT/JP00/07868

く回収して原料ガスを加熱することができる。その結果、改質装置(A)全体の熱損失を低減して、改質反応部(6)の入口部(6a)での原料ガス温度を改質反応部(6)での触媒反応が良好に維持される温度に保つことができる。

しかも、上記熱回収部(34)と改質反応部(6)及び熱交換器(14)との間に 熱移動量制御体となる断熱材(22)が介在しているので、熱回収部(34)と改質 反応部(6)及び熱交換器(14)との離間距離を小さくしつつ、上記熱回収部(3 4)での熱回収を行うことができ、熱回収部(34)を備えた構造であっても、部分 酸化改質装置(A)をコンパクトにすることができる。

また、上記熱回収部 (34)と熱交換器 (14)とが複数の並列の連通路 (32), (32), …により連通されているので、改質装置 (A)の構造を簡単にできるとともに、熱回収部 (34)と改質反応部 (6)及び熱交換器 (14)との間、つまりハウジング (1)と円筒体 (35)との間に介在される上記断熱材 (22)の挿入を容易に行って改質装置 (A)を容易に製造することができる。

さらに、上記改質反応部(6)の周りに、その出口部(6b)から出て熱交換器(14)に至る一部の改質ガス通路(11)が改質反応部(6)を取り囲むように配置されているので、改質反応部(6)が周りを改質ガス通路(11)により覆われて該改質ガスにより断熱されるようになり、改質反応部(6)内の温度を触媒反応温度に良好に保持することができる。しかも、このように改質反応部(6)の出口部(6b)から熱交換器(14)に至る改質ガス通路(11)が改質反応部(6)周りに一体的に形成されるので、改質装置(A)の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

また、上記熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) の原料ガスと改質ガス通路 (11) の改質ガスとが各伝熱フィン (15), (16) の入口側から出口側に向かって同じ向きに流れる並行流式 (並流式) 熱交換器であるので、改質装置 (A) の負荷の変動により改質反応部 (6) でのガス流量が変化しても、その影響を受けることなく、改質反応部 (6) の入口部 (6a) 及び出口部 (6b) の各ガス温度をそれぞれ略一定に保つことができる。つまり、熱交換器 (14) の熱交換量は同じであるので、原料ガスと改質ガスとが入口側から出口側に向かって逆向きに流れる対向流タイプの熱交換器 (実施例1参照) であると、ガス流量が減少したときに、熱交換量が過

度になって改質反応部(6)の入口部(6a)の原料ガス温度が上昇し過ぎる。しかも、出口部(6b)の改質ガス温度が下がり過ぎることが生じる。しかし、この実施例では、熱交換器(14)が並行流式熱交換器であるので、上記のような問題が生じることはない。

加えて、上記熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) の原料ガスと改質ガス通路 (11) の改質ガスとの各ガス流に沿って延びる伝熱フィン (15), (16) を有するフィン付熱交換器であるので、熱交換器 (14) でのガスの圧力損失を低減できるとともに、熱交換器 (14) をコンパクトにすることができる。

しかも、上記各伝熱フィン(15),(16)は波形に折り曲げられているので、その伝熱フィン(15),(16)、延いては熱交換器(14)を容易に製造することができる。

また、上記各伝熱フィン(15),(16)が折曲げ角部にてハウジング(1)の壁部(1a),(1b)及び隔壁(2)にろう付け固定されているので、伝熱フィン(15),(16)とハウジング(1)及び隔壁(2)との接触熱抵抗は小さくなり、熱交換器(14)(改質装置(A))を量産した場合での熱交換性能を安定して確保することができる。

尚、上記熱回収部 (34) とハウジング (1) の壁部 (1a), (1b) 間の空間 とを連通する連通路 (32) (連通管 (31)) は複数ではなくて1つでもよい。

また、上記実施例では、熱回収部(34)は改質反応部(6)及び熱交換器(14)の双方を覆うように配置されているが、熱回収部(34)を改質反応部(6)又は熱交換器(14)のいずれか一方を覆うように配置することもできる。

さらに、図10及び図11に示すように(図10は伝熱フィン(15), (16)を展開した状態で示している)、伝熱フィン(15), (16)において折曲げ角部以外の部分に多数のスリット(17), (17), …(開口部)を形成してもよい。こうすると、熱交換器(14)における各ガス通路(3), (11)が伝熱フィン(15), (16)により伝熱面側とその反対側との2つの通路に区画されていても、両通路のガスが各スリット(17)を通して混合されるようになり、反対側通路のガスの熱交換を良好に行うことができる。しかも、スリット(17)の角部によるガス流の前縁効果も得られることとなり、これらにより熱交換器(14)の熱交換特性を

向上させることができる利点がある。

### (実施例6)

図12は実施例6を示し、熱交換器(14)のタイプ等を変えたものである。すなわち、この実施例では、ハウジング(1)の上部は、下部と同じ位置にある外側壁部(1b)と、この外側壁部(1b)の内周面に間隔をあけた状態で気密状に接合された内側壁部(1a)との2重壁構造とされていて、両壁部(1a),(1b)間に円環状の空間が形成され、この空間の上端部は、外側壁部(1b)を貫通する1本の連通管(31)内の連通路(32)により円筒体(35)内の熱回収部(34)に連通されている。また、隔壁(2)の上部は下部よりも小径の小径部(2a)とされていて、この小径部(2a)の上端はハウジング(1)の両壁部(1a),(1b)間の空間の下端部近くに位置し、これら小径部(2a)と両壁部(1a),(1b)間の空間の下端部とは複数の連通路(30),(30),…により連通されており、熱回収部(34)からの原料ガスを連通路(32)、ハウジング(1)の両壁部(1a),(1b)間の空間、連通路(30)、隔壁(2)の小径部(2a)を介して改質反応部(6)の入口部(6a)に供給する原料ガス通路(3)が形成されている。

そして、熱交換器(14)は、上記ハウジング(1)の内側壁部(1a)内の空間たる改質ガス通路(11)において隔壁(2)の小径部(2a)よりも上側に上端部を閉塞した状態で配置された、上記実施例4と同様の構造の円環状の改質ガス側多孔性固体(25)と、ハウジング(1)の両壁部(1a),(1b)間の空間たる原料ガス通路(3)に外周部を外側壁部(1b)内周面に固定した状態で配置された円環状の原料ガス側多孔性固体(24)とからなり、両多孔性固体(24),(25)による輻射によって原料ガス通路(3)の原料ガスと改質ガス通路(11)の改質ガスとの間で熱交換させるようにしている。尚、この熱交換器(14)は、上記実施例5とは異なり、原料ガス通路(3)の原料ガスと改質ガス通路(11)の改質ガスとが入口側から出口側に向かって逆向き流れる対向流式熱交換器とされている。その他は実施例5と同様の構成である。よって、この実施例でも実施例5と同様の効果が得られる。

#### (実施例7)

図13は実施例7を示し、熱交換器(14)の改質ガス側伝熱フィン(16)を隔

20

壁(2)内の全体に亘って配置したものである。

すなわち、この実施例では、ハウジング(1)内に隔壁(2)が同心状に配置され、この隔壁(2)内の下端部にガス孔(28),(28),…を有する入口側仕切壁(27)が隔壁(2)の下壁部との間に空間を形成するように配置され、この仕切壁(27)の上側に改質反応部(6)が収容され、隔壁(2)内の上端部は改質ガス出口(12)とされている。

ハウジング (1) の上端は隔壁 (2) の外周面に接合されて閉塞され、ハウジング (1) 内の隔壁 (2) との間の空間の下端部は原料ガス入口管 (37) 内の原料ガス 入口 (4) に連通されている一方、同空間の上端部はハウジング (1) の側壁上端部 を貫通する連通管 (29) 内の連通路 (30) に連通され、連通管 (29) の下端部はハウジング (1) 及び隔壁 (2) を気密状に貫通していて、連通路 (30) の下端部が隔壁 (2) 内の入口側仕切壁 (27) 下側の空間に連通しており、原料ガス入口 (4) のガスをハウジング (1) 内の下端部から隔壁 (2) との間の空間及び連通管 (29) 内の連通路 (30) により改質反応部 (6) の入口部 (6a) に供給する原料ガス通路 (3) が、また隔壁 (2) 内の空間のうち改質反応部 (6) 上側の空間により改質ガス通路 (11) がそれぞれ形成されている。

そして、上記改質反応部(6)上側の空間たる改質ガス通路(11)と、ハウジング(1)内の隔壁(2)との間の空間たる原料ガス通路(3)とに亘り、上記実施例5と同様の並行流式のフィン付熱交換器(14)が配置されている。図14に示すように、この熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)は実施例5と同様に、内周側及び外周側の双方の折曲げ角部がそれぞれハウジング(1)内周面及び隔壁

- (2) 外周面にろう付けにより接合されている。一方、改質ガス側伝熱フィン(1
- 6) は原料ガス側伝熱フィン(15)と同様に全体として円環状のものであるが、外 周側の折曲げ角部のみが隔壁(2) 内周面にろう付けにより接合されていて、内周側 折曲げ角部は固定されていない。

また、改質ガス側伝熱フィン(16)の下側には出口側仕切壁(39)が配置されていて、この仕切壁(39)の周縁部に貫通孔からなる多数のガス孔(28),(28),…が改質ガス側伝熱フィン(16)の位置に対応して開口されており、改質反応部(6)の出口部(6b)から出てきた改質ガスを仕切壁(39)周縁部のガス孔



(28), (28), …を通過させて改質ガス側伝熱フィン(16)に強制的に案内するようにしている。

尚、この実施例では、上記実施例5の如き熱回収部(34)は設けられていない。 したがって、この実施例においては、並行流式の熱交換器(14)を用いたことに よる作用効果が得られる。すなわち、改質装置(A)の負荷の変動により改質反応部 (6)でのガス流量が変化しても、その影響を受けることなく、改質反応部(6)の 入口部(6a)及び出口部(6b)の各ガス温度をそれぞれ略一定に保つことができ る。

また、熱交換器(14)として、伝熱フィン(15), (16)が波形に折り曲げられているフィン付熱交換器であるので、熱交換器(14)でのガスの圧力損失を低減できるとともに、熱交換器(14)をコンパクトにすることができ、伝熱フィン(15), (16)及び熱交換器(14)を容易に製造することができる。しかも、熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)が折曲げ角部にてハウジング(1)の壁部及び隔壁(2)に、また改質ガス側伝熱フィン(16)が外周側の折曲げ角部にて隔壁(2)内周面にそれぞれろう付け固定されているので、伝熱フィン(15), (16)とハウジング(1)及び隔壁(2)との接触熱抵抗が小さくなって、熱交換器(14)の熱交換性能を安定して確保することができる。

# (実施例8)

図15は実施例8を示し、基本的には上記実施例7の構造に熱回収部(34)を追加したものである。

すなわち、この実施例では、ハウジング(1)内部に隔壁(2)が設けられておらず、ハウジング(1)内下部にガス孔(28),(28), $\cdots$ を有する入口側仕切壁(27)がハウジング(1)の下壁部と空間をあけて配置され、この仕切壁(27)の上側に改質反応部(6)が配設されている。

また、上記実施例5 (図8参照) と同様に、ハウジング(1) の上部は、下部と同じ位置にある内側壁部(1a) と、この内側壁部(1a) の外周面に接合された外側壁部(1b) との2重壁構造とされ、両壁部(1a),(1b)間の円環状の空間の上端部は上記ハウジング(1)内下端部の空間に対し連通管(29)内の連通路(30)により連通している一方、両壁部(1a),(1b)間の空間の下端部は、円筒

体 (35) 内の熱回収部 (34) と1本 (複数本でもよい) の連通管 (31) 内の連通路 (32) により連通している。

尚、上記実施例7と同様に、ハウジング(1)の両壁部(1a),(1b)間の空間に並行流式のフィン付熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)が、また内側壁部(1a)内の上部に同熱交換器(14)の上記実施例7(図13参照)と同様の改質ガス側伝熱フィン(16)がそれぞれ配設されている。また、熱回収部(34)を形成する円筒体(35)は上記実施例5の構造とは異なり、上下壁(35c),(35d)がなくて、円環状の内外側壁(35a),(35b)の上下端部同士を直接に気密状に接合一体化してなる(図示例では外側壁(35b)の上下端部が半径方向内側に折り曲げられて内側壁(35a)の上下端部に接合されている)。

したがって、この実施例の場合、上記実施例 5 と同様の作用効果を奏することができる。

#### (実施例9)

図16は実施例9を示す。この実施例では、ハウジング(1)内の隔壁(2)は、 間隔をあけて互いに同心状に配置された内側及び外側隔壁(2b),(2c)の2重 構造に形成され、両隔壁(2b),(2c)間の下端部は円環状の下壁(2d)によ り気密状に閉塞されているが、上端部は開放されている。そして、内側隔壁 (2b) 内の下部にガス孔(28)、(28)、…を有する入口側仕切壁(27)が配置され ていて、その上に改質反応部(6)が収容されている。一方、内側隔壁(2b)内の 上端には並行流式のフィン付熱交換器(14)の改質ガス側伝熱フィン(16)が上 記実施例7と同様に配置されている。また、両隔壁(2b),(2c)間の円環状空 間は上下略中央部で円環状の仕切壁(41)により区画され、その上側の空間には上 記熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)が収容されてろう付け固定され ている。そして、内側及び外側隔壁(2b),(2c)間の空間において原料ガス側 伝熱フィン(15)と仕切壁(41)との間に、外端部が熱回収部(34)に連通す る連通路(32)の内端部が接続されており、熱回収部(34)から連通路(32) を介して内側及び外側隔壁(2b),(2c)間の空間の仕切壁(41)上側に供給 された原料ガスを原料ガス側伝熱フィン(15)を通過させた後に両隔壁(2b), (2c)間の空間の上端からハウジング(1)と外側隔壁(2c)との間の空間に導

出して外側隔壁(2c)周りを下側に流した後、改質反応部(6)の入口部(6a)に供給するようにしている。尚、熱回収部(34)を形成する円筒体(35)は上記実施例5と同様の構造である。

その他は上記実施例5と同様の構成である。従って、この実施例でも上記実施例6 と同様の作用効果を奏することができる。

# (実施例10)

図17は実施例10を示し、改質反応部(6)を分割したものである。

すなわち、この実施例では、上記実施例6と同様に、ハウジング(1)の上部は、下部と同じ位置にある外側壁部(1b)と、この外側壁部(1b)の内周面に接合された内側壁部(1a)との2重壁構造とされていて、両壁部(1a),(1b)間に円環状の空間が形成され、この空間の下端部が連通路(32)により円筒体(35)内の熱回収部(34)に連通されている。尚、円筒体(35)は、上記実施例8(図15参照)と同様に、内外側壁(35a),(35b)の上下端部同士を直接に接合してなるものである。

また、隔壁(2)上部の小径部(2a)上端はハウジング(1)の両壁部(1a), (1b)間の空間の上端部近くに位置し、この小径部(2a)上とハウジング(1)の両壁部(1a), (1b)間の空間の上端部とは複数の連通路(30), (30), …により連通されており、熱回収部(34)からの原料ガスを連通路(32)、ハウジング(1)の両壁部(1a), (1b)間の空間、連通路(30), (30), …、隔壁(2)の小径部(2a)内を介して改質反応部(6)の入口部(6a)に供給する原料ガス通路(3)が形成されている。

さらに、ハウジング(1)の両壁部(1 a), (1 b)間の空間たる原料ガス通路(3)に並行流式のフィン付熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)が外周部を外側壁部(1b)内周面に、また内周部を内側壁部(1a)外周面にそれぞれろう付け固定した状態で配置され、ハウジング(1)の内側壁部(1a)と隔壁

(2)の小径部(2a)との間の空間たる改質ガス通路(11)に改質ガス側伝熱フィン(16)が外周部を内側壁部(1a)内周面に、また内周部を小径部(2a)外周面にそれぞれろう付け固定した状態で配置されている。

そして、改質反応部 (6) は、上記隔壁 (2) の下部に位置する円柱状の第1反応

部(43)と、該第1反応部(43)の周り、つまりハウジング(1)内下部及び隔壁(2)下部の間の空間に設けられた円環状の第2反応部(44)とに分割され、第2反応部(44)下端の入口部は第1反応部(43)下端の出口部に対しハウジング(1)下壁部と隔壁(2)下壁部との間の空間を介して連通している。また、第1反応部(43)のガスの流れが下向きで、第2反応部(44)のガスの流れが上向きとされて両反応部のガスの流れは逆方向とされている。

したがって、この実施例においては、熱回収部(34)からの原料ガスは、連通路(32)を通ってハウジング(1)の内外側の壁部(1a), (1b)間の空間に供給された後、熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)で加熱されて連通路(30), (30), …及び隔壁(2)の小径部(2a)を介して改質反応部(6)の入口部(6a)に導入される。一方、この改質反応部(6)により生成された改質ガスはハウジング(1)の内側壁部(1a)と隔壁(2)の小径部(2a)との間の空間(改質ガス通路(11))を通って熱交換器(14)の改質ガス側伝熱フィン(16)で吸熱された後に改質ガス出口(12)に至る。

そのとき、上記改質反応部(6)は、隔壁(2)内の第1反応部(43)と、該第1反応部(43)の周りに設けられた第2反応部(44)とに直列に分割され、これら第1及び第2反応部(43),(44)のガスの流れが逆向きであるので、改質反応部(6)の第1反応部(43)の周りが第2反応部(44)により覆われて断熱されるようになり、改質反応部(6)内の温度を高い温度に保持することができるとともに、改質反応部(6)自体を2重構造として、改質装置(A)の構造をシンプルでコンパクトなものとすることができる。

## (実施例11)

図18は実施例11を示し、上記実施例10(図17参照)の構成において、熱交換器 (14)の原料ガス側伝熱フィン (15)と改質ガス側伝熱フィン (16)との配置を代えたものである。

すなわち、この実施例では、隔壁(2)の上部が部分的に互いに同心状に配置された内側及び外側隔壁(2b),(2c)の2重構造とされ、両側隔壁(2b),(2c)間に上方に開放された有底円環状の空間が形成されている。また、外側隔壁(2c)の外壁部はドーム状の上壁(2e)により内側隔壁(2b)の上端と隙間をあけ



た状態で気密状に閉塞されている。さらに、隔壁(2)の両側隔壁(2b),(2 c)間の空間の上部に並行流式のフィン付熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)が、また外側隔壁(2c)とハウジング(1)との間の空間に改質ガス側伝熱フィン(16)がそれぞれ配置されている。そして、隔壁(2)の両側隔壁(2b),(2c)間の空間の下端部に熱回収部(34)からの連通路(32)が連通されており、熱回収部(34)から連通路(32)を経て隔壁(2)の両側隔壁(2b),(2c)間の空間の下端部に供給された原料ガスを熱交換器(14)の原料ガス側伝熱フィン(15)で加熱した後に内側隔壁(2b)内に上端から導入して改質反応部(6)の第1反応部(43)に供給するようにしている。

したがって、この実施例においても上記実施例 1 0 と同様の作用効果を得ることができる。

尚、上記各実施例では、改質反応部 (7) をモノリスで構成しているが、粒状の触媒を充填したものを用いることもできる。また、本発明は、上記実施例の如き燃料電池システム以外に用いられる改質装置にも適用できるのはいうまでもない。

#### (産業上の利用可能性)

本発明は、燃料電池や水素エンジン等に使用する水素を、炭化水素やメタノールを含む原料ガスを改質反応部での部分酸化反応により改質して生成する場合に、改質反応部内の温度むらを低減し、原料ガスを改質反応部での反応熱により予熱して、自己熱回収により熱効率を向上させ、原料ガスの予熱のための予熱器を一体的に形成して装置の構造のコンパクト化を図ることができ、燃料電池や水素エンジン等の実用性を向上できる点で産業上の利用可能性は高い。

### 請求の範囲

1. 原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスを生成する改質 反応部(6)を有する部分酸化改質装置であって、

上記改質反応部(6)の周りに、改質反応部(6)に対し原料ガスを供給する 原料ガス通路(3)が設けられていることを特徴とする部分酸化改質装置。

2. 原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスを生成する改質 反応部(6)を有する部分酸化改質装置であって、

上記改質反応部(6)の出口部(6b)に連通する改質ガス通路(11)の改質ガスと、改質反応部(6)の入口部(6a)に連通する原料ガス通路(3)の原料ガスとの間で熱交換させる熱交換器(14)が設けられていることを特徴とする部分酸化改質装置。

- 3. 改質反応部(6)と原料ガス通路(3)とがハウジング(1)内に一体的に設けられていることを特徴とする請求項1記載の部分酸化改質装置。
- 4. 改質反応部(6)と原料ガス通路(3)との間の熱移動量を制御する熱移動量制御体(10)が設けられていることを特徴とする請求項1記載の部分酸化改質装置。
- 5. 熱移動量制御体(10)は耐火性の断熱材であることを特徴とする請求項4記載の部分酸化改質装置。
- 6. 改質反応部(6)の出口部(6b)に連通する改質ガス通路(11)の周りに 原料ガス通路(3)が設けられ、

上記原料ガス通路(3)の原料ガスと改質ガス通路(11)の改質ガスとの間で熱交換させる熱交換器(14)が設けられていることを特徴とする請求項1記載の部分酸化改質装置。

- 7. 熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) 及び改質ガス通路 (11) にそれぞれ臨みかつガス流に沿って流れる伝熱フィン (15), (16) を有するものであることを特徴とする請求項 2 又は 6 記載の部分酸化改質装置。
- 8. 熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) 及び改質ガス通路 (11) にそれぞれ位置する多孔性固体 (24), (25) を有するものであることを特徴とする請求項 2 又は 6 記載の部分酸化改質装置。
- 9. 改質反応部(6)、原料ガス通路(3)、改質ガス通路(11)及び熱移動量 制御体(10)がハウジング(1)内に一体的に設けられていることを特徴とす る請求項6記載の部分酸化改質装置。
- 10. 改質反応部(6)がハニカム構造のモノリス(7)からなるものであることを特徴とする請求項1又は2記載の部分酸化改質装置。
- 11. 原料ガス通路(3)は、原料ガスを混合させる混合器を有することを特徴とする請求項9又は10記載の部分酸化改質装置。
- 12. 熱交換器 (14) は、原料ガス通路 (3) の原料ガスと改質ガス通路 (1 1) の改質ガスとが入口側から出口側に向かって同じ向きに流れる並行流式熱交 換器であることを特徴とする請求項 2 又は 6 記載の部分酸化改質装置。
- 13. 伝熱フィン (15), (16) は、波形に折り曲げられていることを特徴と する請求項7記載の部分酸化改質装置。
- 14. 伝熱フィン(15), (16)は周囲壁部に対しろう付けされて固定されていることを特徴とする請求項7又は13記載の部分酸化改質装置。

- 15. 伝熱フィン(15), (16) にスリット(17) が形成されていることを 特徴とする請求項7、13又は14記載の部分酸化改質装置。
- 16. 熱交換器(14)上流側の原料ガス通路(3)に、改質反応部(6)又は熱交換器(14)の少なくとも一方を該改質反応部(6)又は熱交換器(14)から離れた状態で取り囲むように配置された略環状空間からなる熱回収部(34)が設けられていることを特徴とする請求項2又は6記載の部分酸化改質装置。
- 17. 熱回収部(34)と改質反応部(6)又は熱交換器(14)との間に熱移動量制御体(22)が介在されていることを特徴とする請求項16記載の部分酸化改質装置。
- 18. 熱回収部(34)と熱交換器(14)とは1つ又は複数の連通路(32)により連通されていることを特徴とする請求項16又は17記載の部分酸化改質装置。
- 19. 改質反応部(6)の周りに、改質反応部(6)の出口部(6b)と熱交換器(14)とを連通する改質ガス通路(11)が設けられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 20. 改質反応部(6)が第1反応部(43)と、該第1反応部(43)の周りに 設けられ、入口部が第1反応部(43)の出口部に連通する第2反応部(44) とに分割されていて、

上記第1及び第2反応部(43), (44)のガスの流れが逆向きであることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。

21. 起動時に原料ガスを加熱する加熱手段(20)が設けられていることを特徴とする請求項 $1\sim20$ のいずれか1つに記載の部分酸化改質装置。

## 補正書の請求の範囲

[2001年4月25日(25.04.01)国際事務局受理:出願当初の請求の範囲1,3,6-8,11-12,18及び21は取り下げられた;出願当初の請求の範囲2,4,9-10及び13-16は補正された;他の請求の範囲は変更なし。(3頁)]

- 1. (削除)
- 2. (補正後)原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスを生成する改質反応部(6)を有する部分酸化改質装置であって、

円筒状のハウジング(1)と、該ハウジング(1)内に間隔をあけて配置され、 内部に上記改質反応部(6)が設けられた円筒状の隔壁(2)とを備え、

上記隔壁 (2) 内に、上記改質反応部 (6) の出口部 (6b) に連通する改質 ガス通路 (11) が、またハウジング (1) と隔壁 (2) との間に、上記改質反 応部 (6) の入口部 (6a) に連通する原料ガス通路 (3) がそれぞれ設けられ、

上記改質ガス通路(11)の改質ガスと原料ガス通路(3)の原料ガスとの間で熱交換させる熱交換器(14)が設けられていることを特徴とする部分酸化改質装置。

- 3. (削除)
- 4. (補正後)改質反応部(6)と原料ガス通路(3)との間の熱移動量を制御する熱移動量制御体(10)が設けられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 5. 熱移動量制御体 (10) は耐火性の断熱材であることを特徴とする請求項 4 記載の部分酸化改質装置。
- 6. (削除)
- 7. (削除)
- 8. (削除)

- 9. (補正後) 改質反応部(6)、原料ガス通路(3)、改質ガス通路(11)及び熱移動量制御体(10)がハウジング(1)内に一体的に設けられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 10. (補正後) 改質反応部(6) がハニカム構造のモノリス(7) からなるものであることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 11. (削除)
- 12. (削除)
- 13. (補正後) 熱交換器(14)は、原料ガス通路(3)及び改質ガス通路(11)にそれぞれ臨みかつガス流に沿って流れる伝熱フィン(15),(16)を有し、

上記伝熱フィン(15), (16)は、波形に折り曲げられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。

- 14. (補正後) 伝熱フィン(15), (16) は周囲壁部に対しろう付けされて 固定されていることを特徴とする請求項13記載の部分酸化改質装置。
- 15. (補正後) 伝熱フィン(15), (16) にスリット(17) が形成されていることを特徴とする請求項13又は14記載の部分酸化改質装置。
- 16. (補正後) 熱交換器(14)上流側の原料ガス通路(3)に、改質反応部(6)又は熱交換器(14)の少なくとも一方を該改質反応部(6)又は熱交換器(14)から離れた状態で取り囲むように配置された略環状空間からなる熱回収部(34)が設けられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。

17. 熱回収部(34)と改質反応部(6)又は熱交換器(14)との間に熱移動量制御体(22)が介在されていることを特徴とする請求項16記載の部分酸化改質装置。

## 18. (削除)

- 19. 改質反応部(6)の周りに、改質反応部(6)の出口部(6b)と熱交換器(14)とを連通する改質ガス通路(11)が設けられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 20. 改質反応部(6)が第1反応部(43)と、該第1反応部(43)の周りに 設けられ、入口部が第1反応部(43)の出口部に連通する第2反応部(44) とに分割されていて、

上記第1及び第2反応部(43),(44)のガスの流れが逆向きであること を特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。

## 21. (削除)

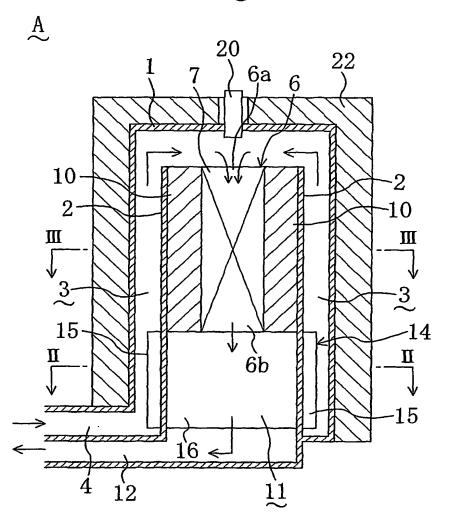
## 補正された用紙 (条約第19条)

請求の範囲第2項は、部分酸化改質装置が円筒状のハウジングと、その内部に配置された円筒状の隔壁とを備えた2重円管構造であること、隔壁内に改質反応部と、その出口部に連通する改質ガス通路が、またハウジング及び隔壁間に、改質反応部の入口部に連通する原料ガス通路がそれぞれ設けられていること、熱交換器は、これら改質ガス通路の改質ガスと原料ガス通路の原料ガスとの間で熱交換させることを明確にした。

写J用例JP59-73403A、JP10-106606A、EP600621A&JP6-239601A&US5458857A&DE693098 62A&CA2109655Aには、改質反応部の周りに原料ガス通路を設けることが示されている。本発明は、改質ガスと原料ガスとの間で熱交換させる熱交換器を2重円管構造とすることで、改質反応部の熱効率を良好に維持しながら、最もシンプルでコンパクト構造にできる効果が得られる。

1/17

Fig. 1



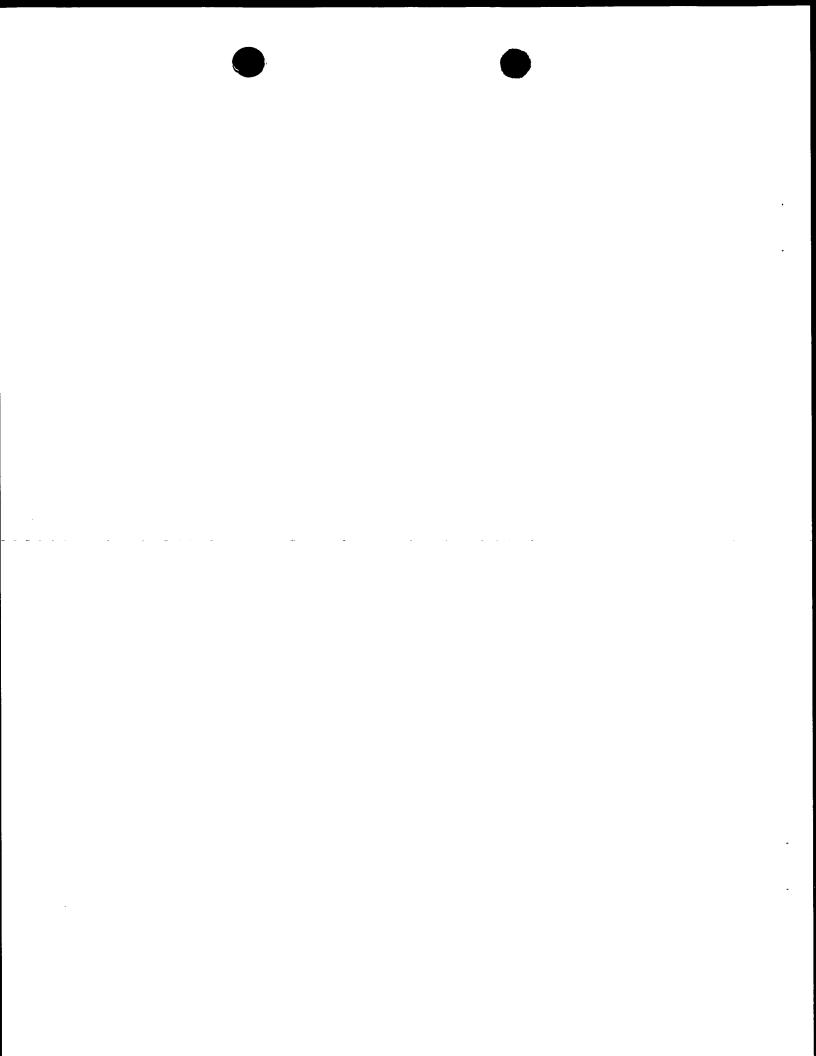
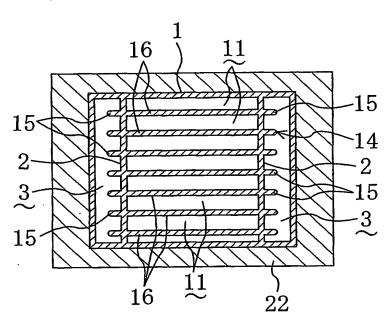


Fig. 2

 $\overset{ ext{A}}{\sim}$ 



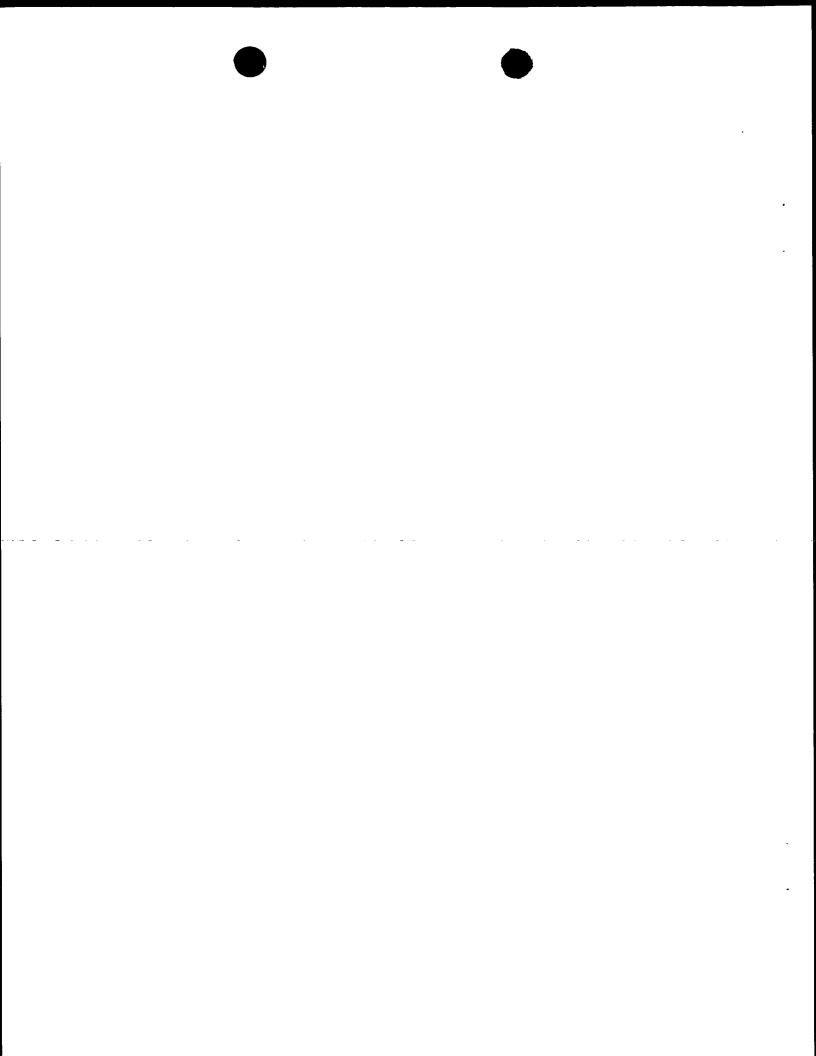
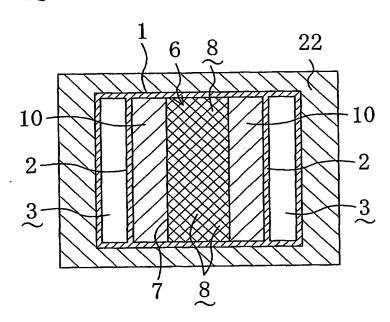


Fig. 3

 $\overset{\text{A}}{\sim}$ 



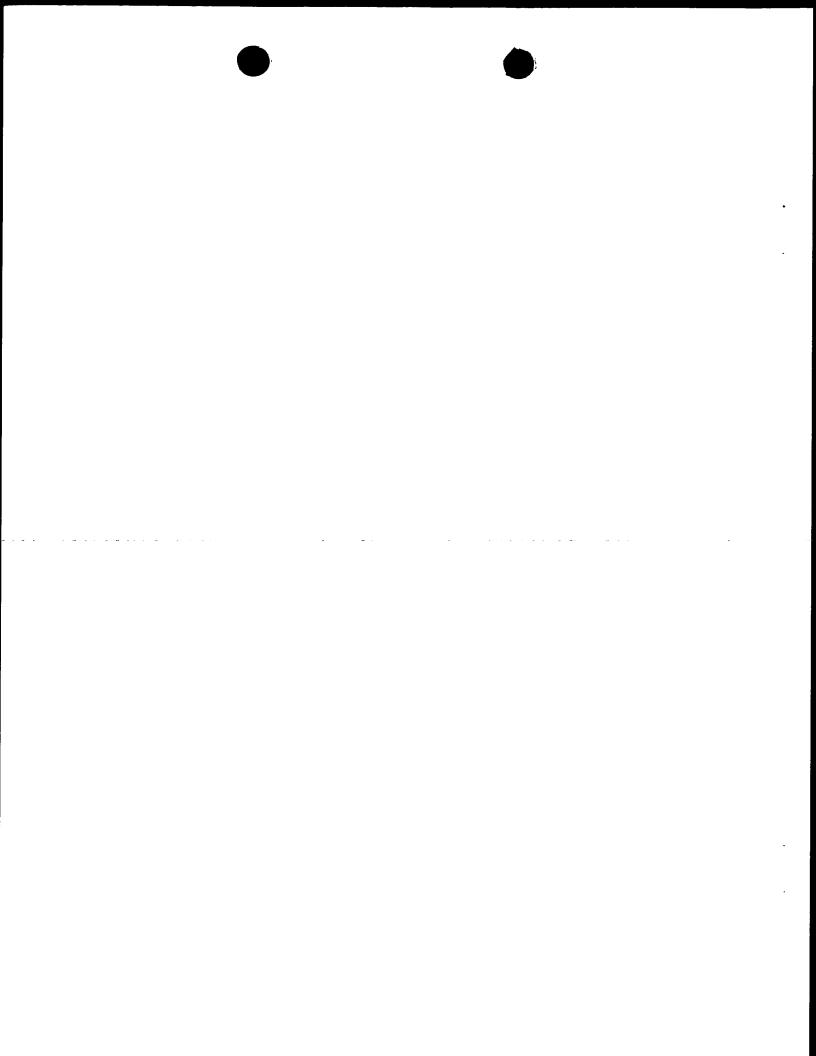
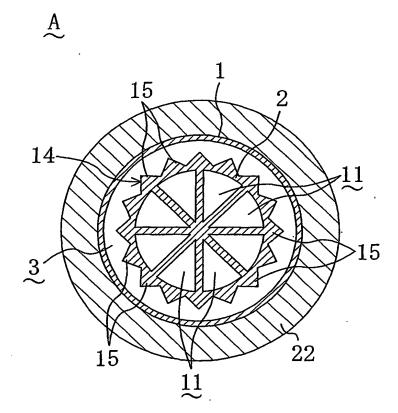


Fig. 4



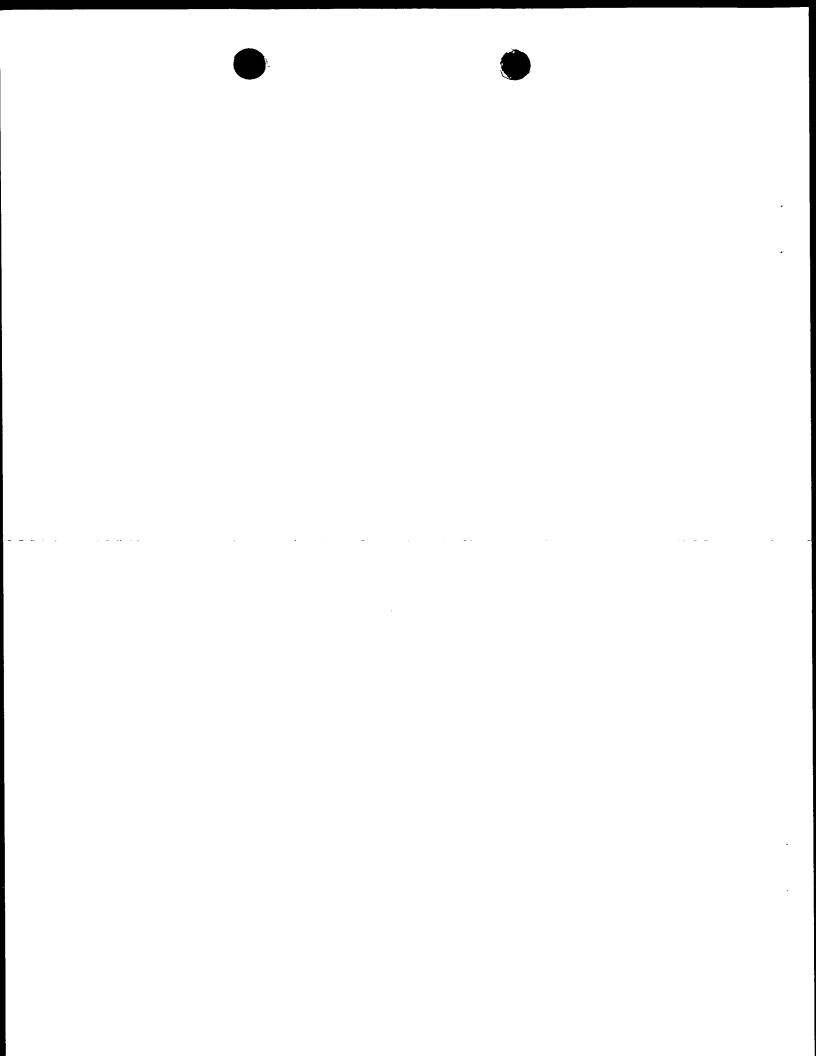
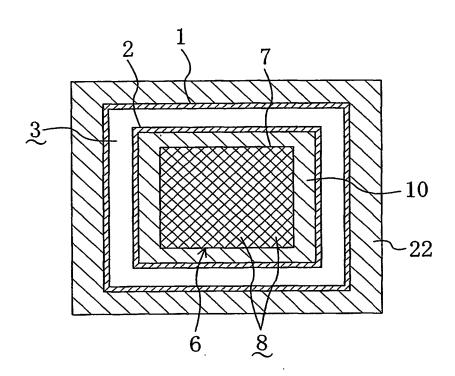


Fig. 5

A



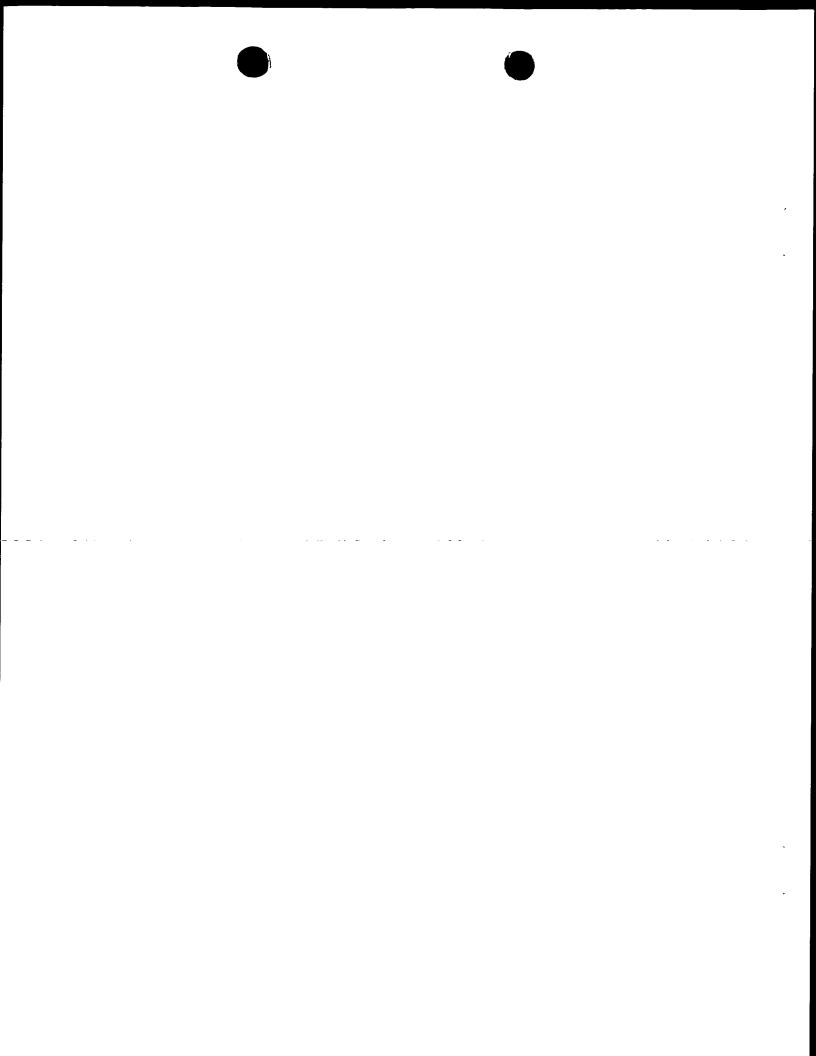
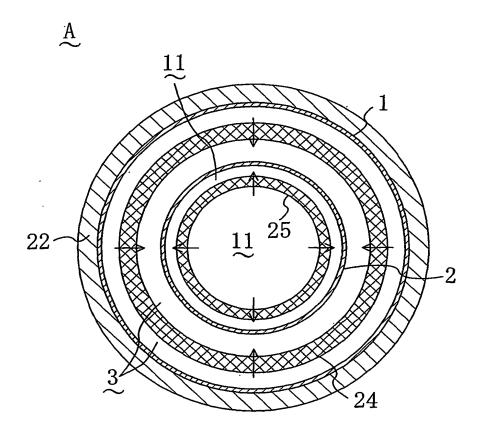


Fig. 6



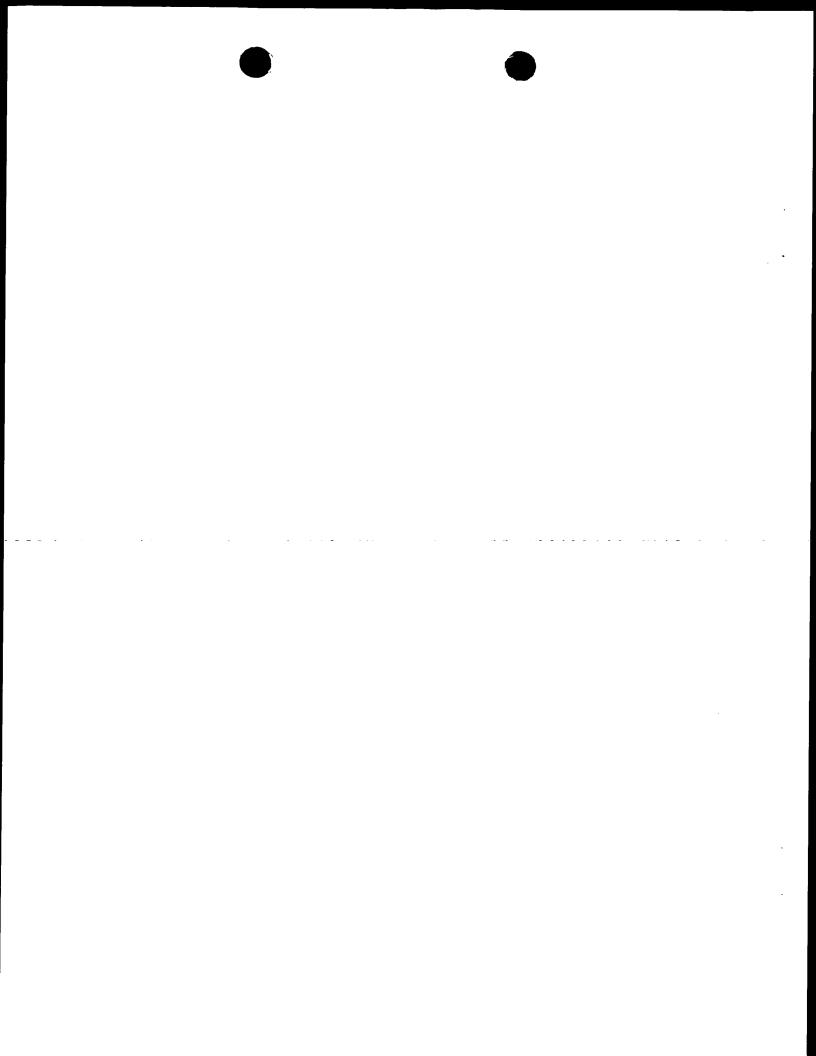
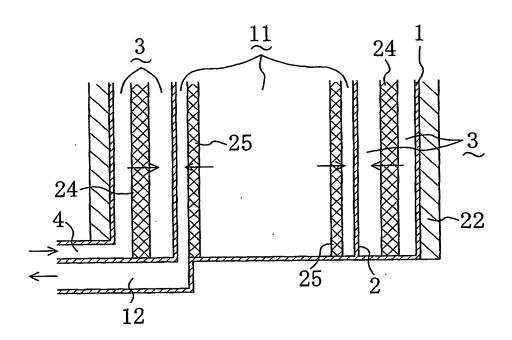
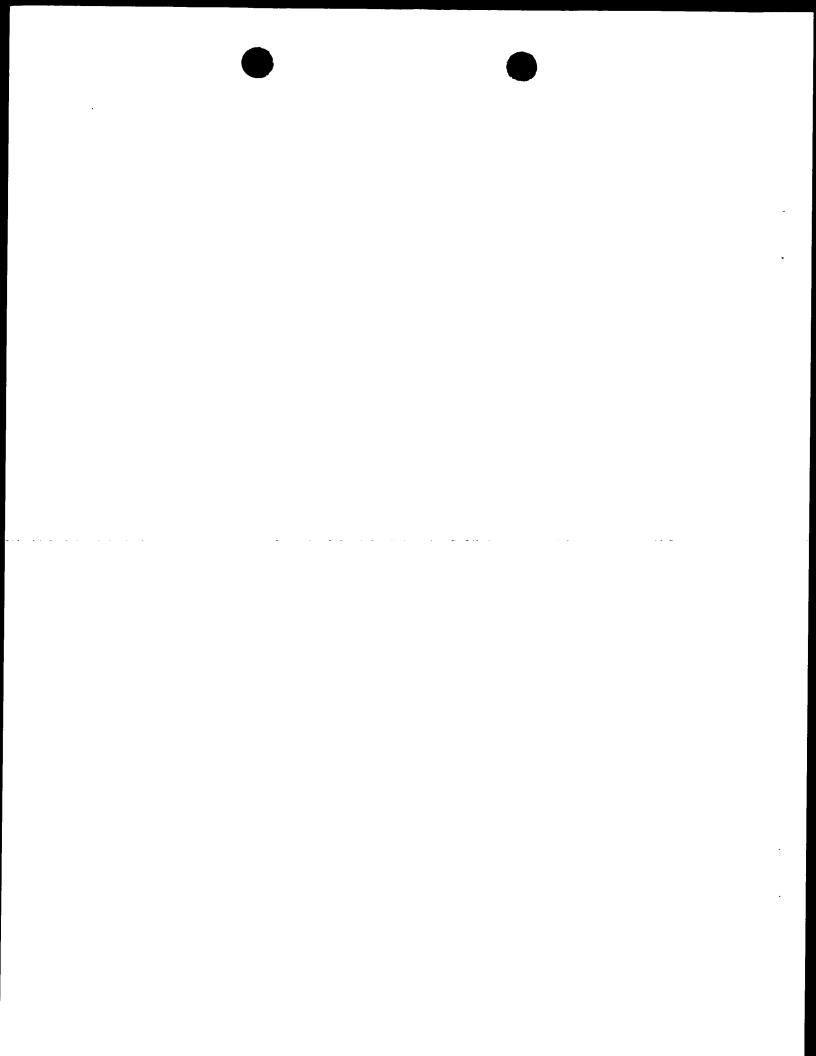
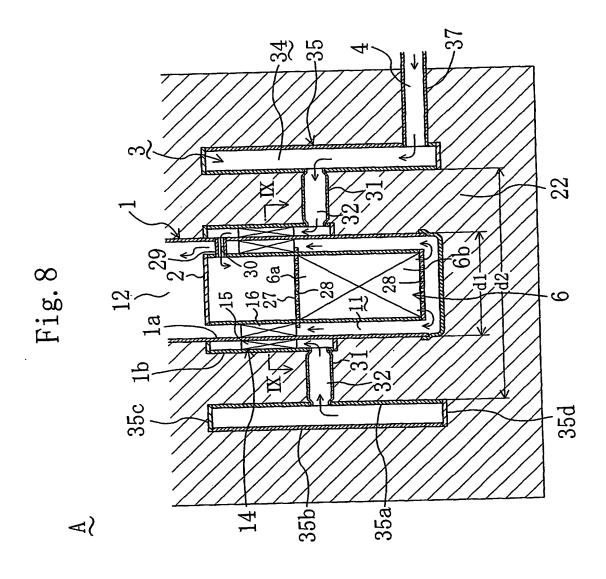


Fig. 7







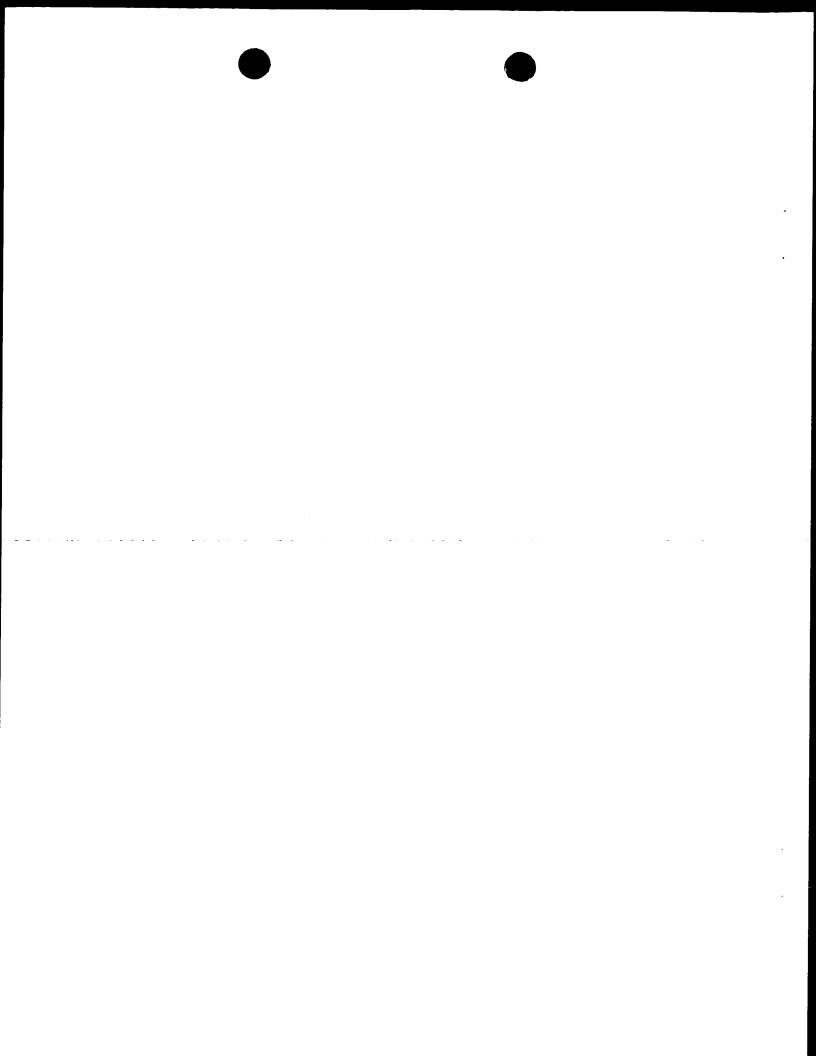
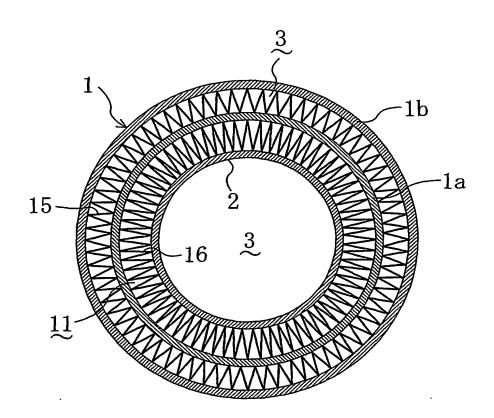


Fig. 9



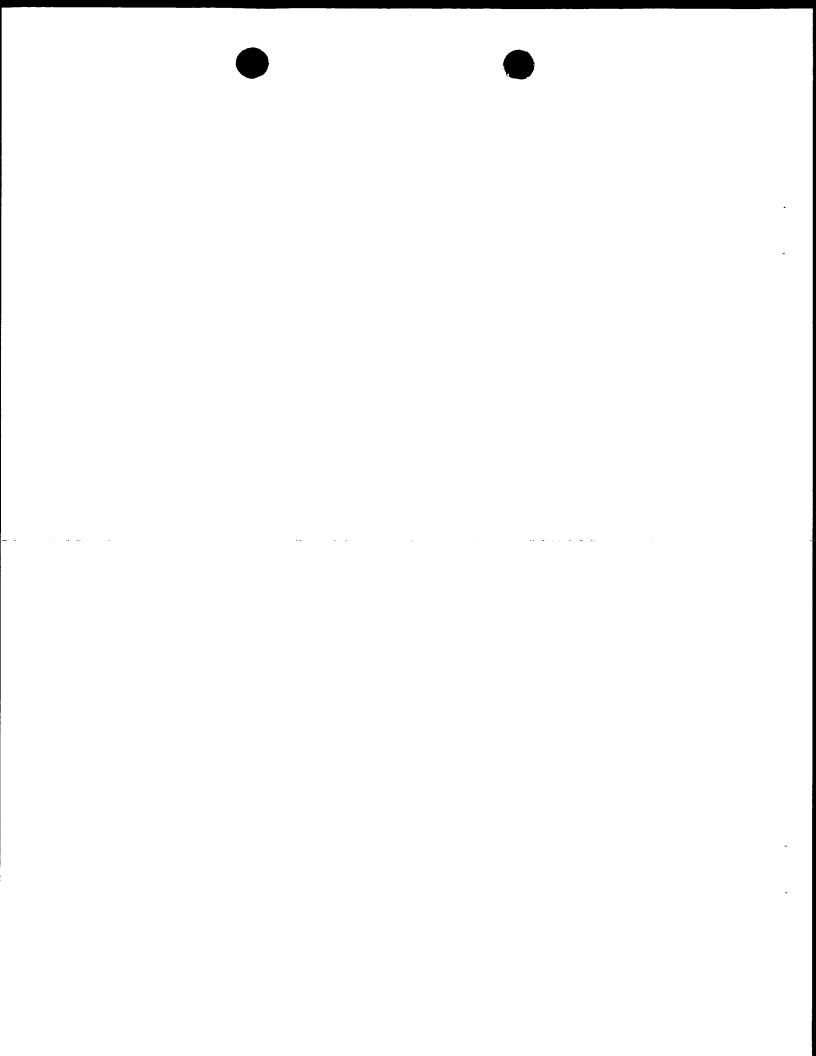


Fig. 10

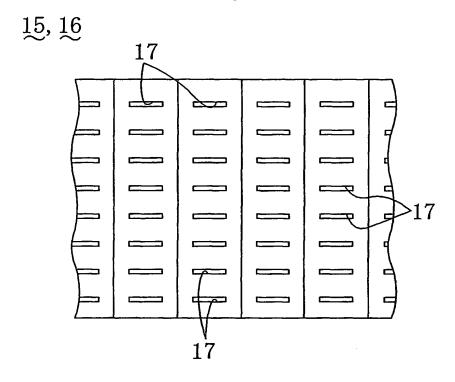
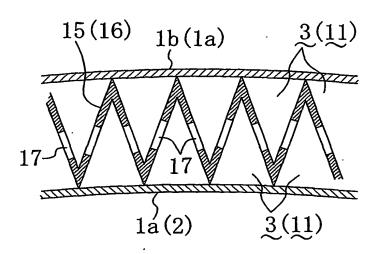
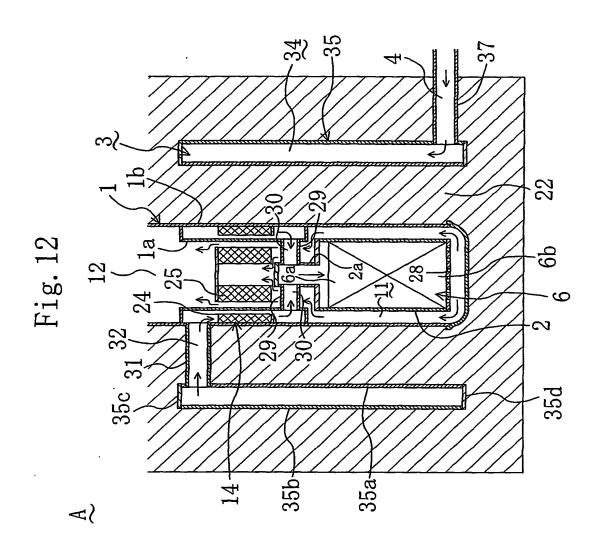


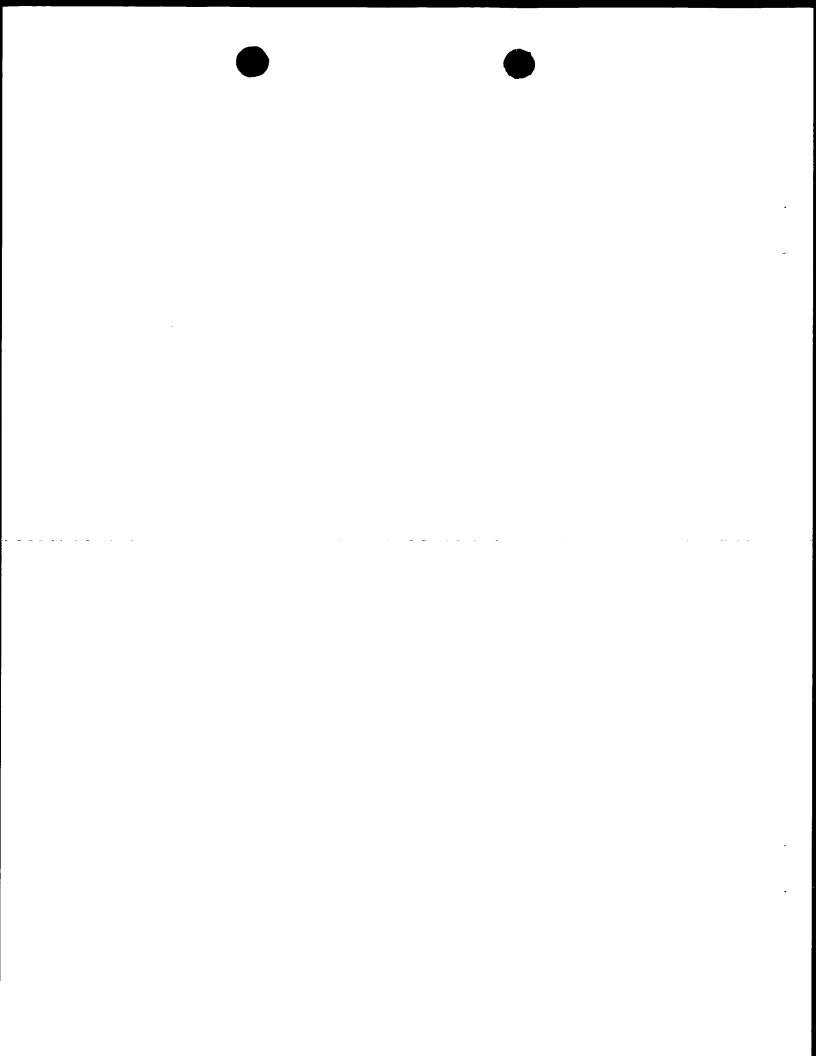
Fig. 11

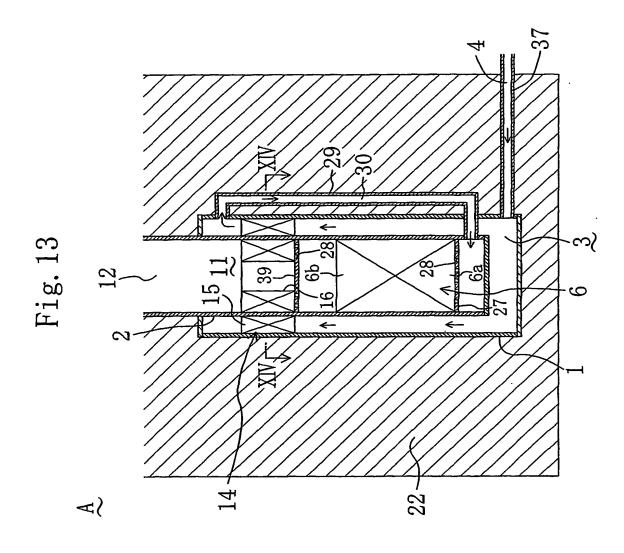




11/17







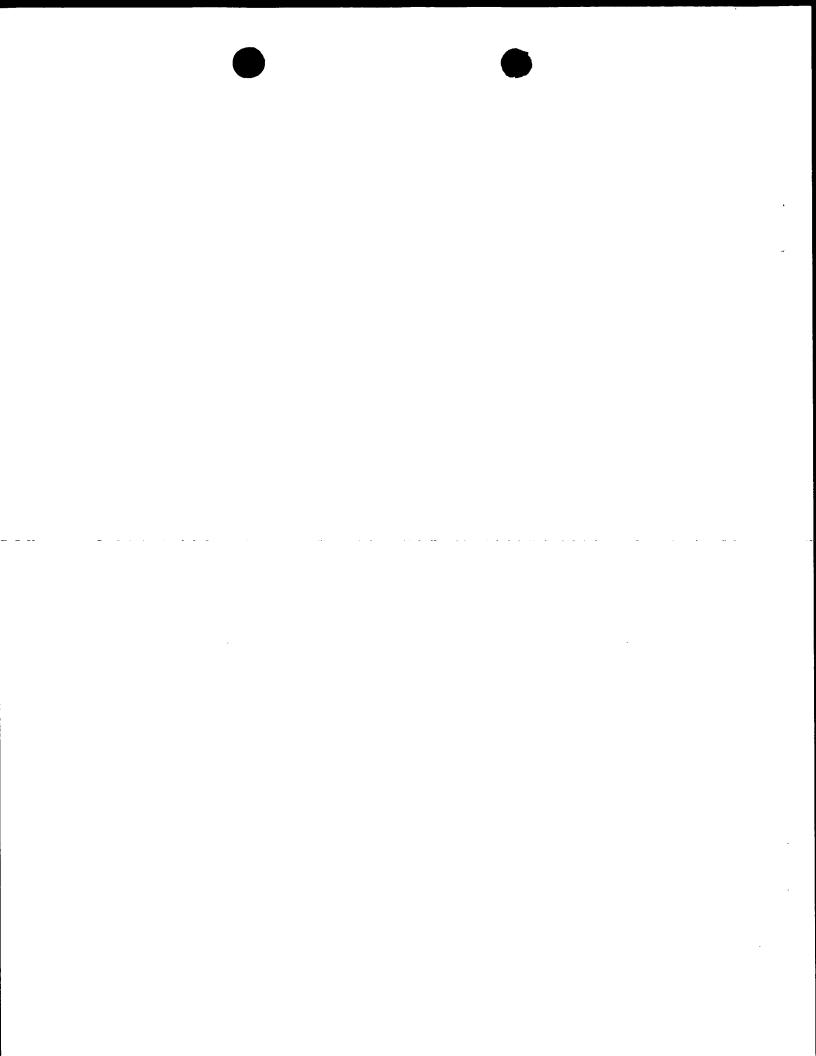
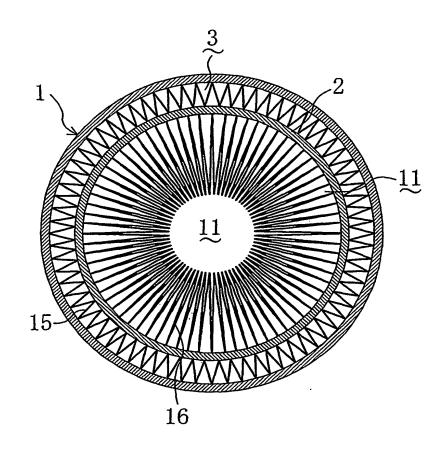
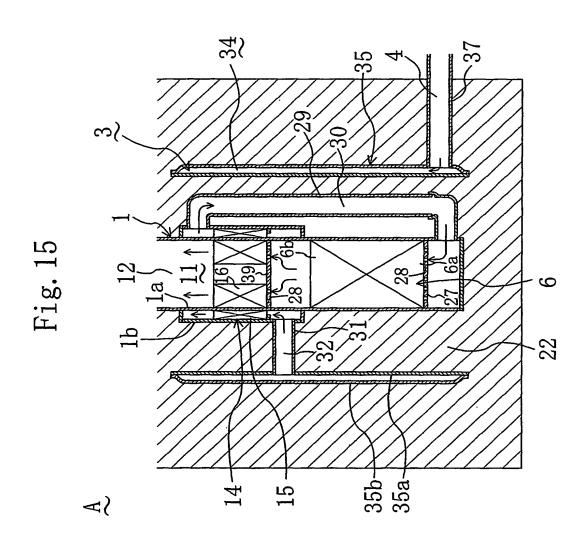


Fig. 14



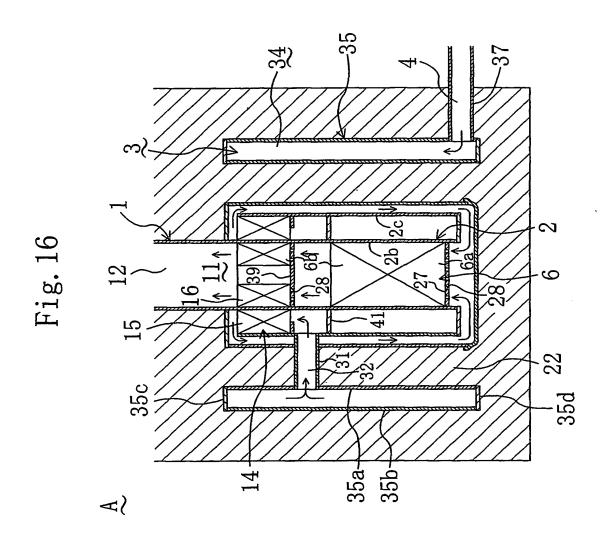


14/17



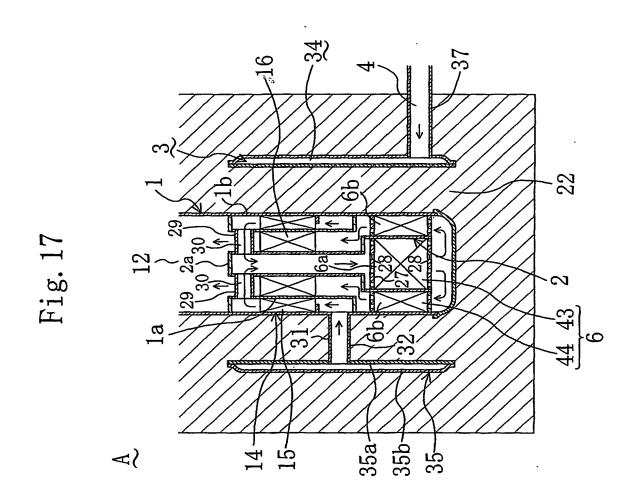


15/17

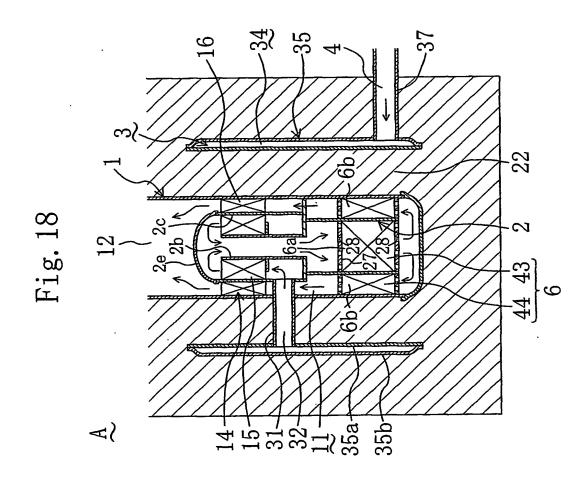


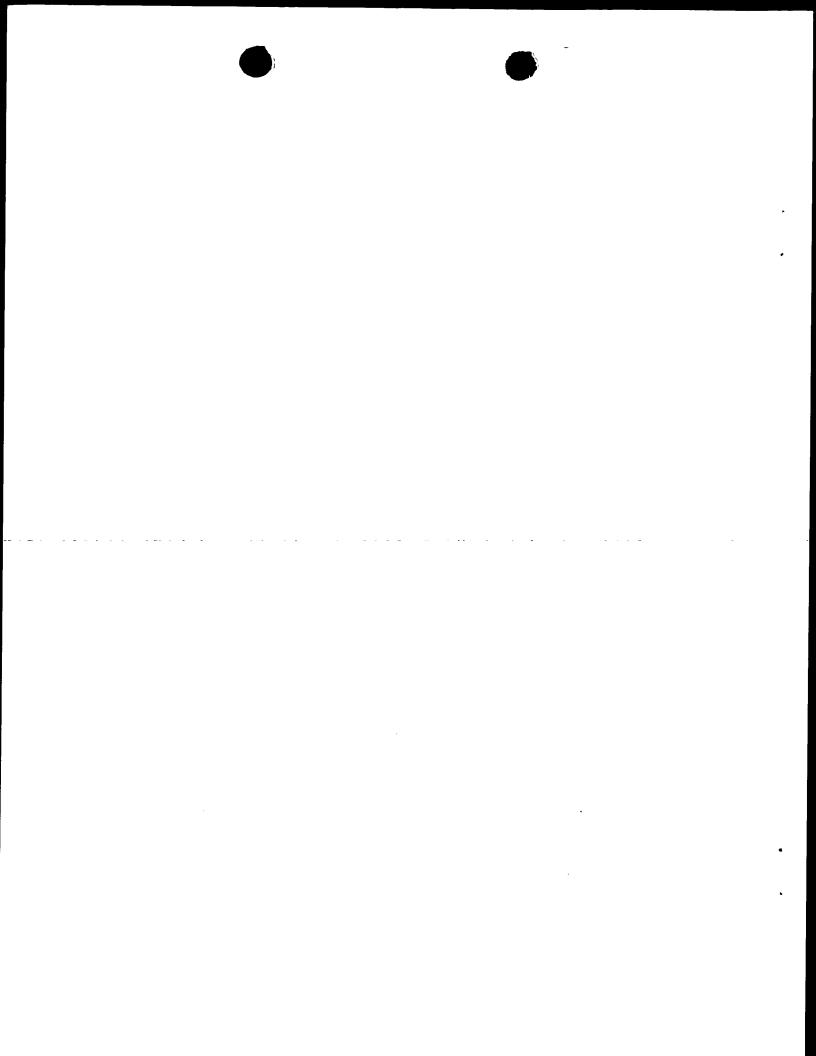


16/17











International application No.

PCT/JP00/07868

	A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>7</sup> C01B3/32							
According to	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC							
B. FIELDS	SEARCHED							
Minimum do Int.	3. FIELDS SEARCHED  Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  Int.Cl <sup>7</sup> C01B3/32-C01B3/48							
Jits Koka	ion searched other than minimum documentation to the e uyo Shinan Koho 1926-1996 i Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001	Jitsuyo Shinan Toroku Ko	oho 1969-2001					
Electronic de WPI/	ata base consulted during the international search (name	of data base and, where practicable, sear	en terms used)					
C. DOCUI	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT							
Category*	Citation of document, with indication, where app		Relevant to claim No.					
X Y	JP, 59-73403, A (Matsushita Elec 25 April, 1984 (25.04.84), Claims; drawings (Family: none		1-4,6,7,9-15, 19,21 5,8,20,21, 16-18					
A X	JP, 10-106606, A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 1-4,6,7,9-15, 24 April, 1998 (24.04.98),							
Y	Claims; Par. No. [0058] (Famil		5,8,20,21					
х	EP, 600621, A1 (ROLLS-ROYCE AND ASSOCIATES LIMITED), 08 June, 1994 (08.06.94)   & JP, 6-239601, A & US, 5458857, A   & DE, 69309862, A & CA, 2109655, A							
Y	JP, 52-11058, U (Toyota Motor C 26 January, 1977 (26.01.77), Claims of Utility Model; page 5, 15; Figs. 1 to 3 (Family: none	line 1 to page 7, line	5					
Y	JP, 60-181588, A (Nissan Motor 17 September, 1985 (17.09.85)	Co., Ltd.), (Family: none)	8					
Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.						
* Specis "A" docum consid "E" earlier date "L" docum cited i specis "O" docum means docum than t	al categories of cited documents: nent defining the general state of the art which is not lered to be of particular relevance r document but published on or after the international filing ment which may throw doubts on priority claim(s) or which is to establish the publication date of another citation or other al reason (as specified) ment referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family  Date of mailing of the international search report						
06	February, 2001 (06.02.01)	20 February, 2001 (	20.02.01)					
Name and Jap	mailing address of the ISA/ panese Patent Office	Authorized officer						
Facsimile l	No.	Telephone No.						

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/078.68

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No					
Ā	US, 5030440, A (Imperial Chemical Industries PLC), 09 July, 1991 (09.07.91) & JP, 2-69301, A & EP, 361648, A1 & DE, 68905891, T & GB, 8817480, A & DK, 363489, A & CN, 1039774, A & CA, 1333212, A	20				



国際出願番号 PCT/JP00/07868

A. 発明の層	・ はする分野の分類(国際特許分類(IPC))		
Int. C	L' C01B3/32		
	Tった分野 W小限資料(国際特許分類(IPC))		
			. [
Int.	Cl.' C01B3/32-C01B3/48		į
見い間数数切り	トの資料で調査を行った分野に含まれるもの		
日本国実用	I - F - I - I - I - I - I - I - I - I -		
	実用新案公報 1971-2001年		/
日本国登録	実用新案公報 1994-2001年 '		
日本国実用	新案登録公報 1969-2001年		
国際調査で使用	目した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)	
v	VP I/L		
C. 関連する	ると認められる文献		Enste 3 as
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	きは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Х	JP, 59-73403, A(松下電器産業株式会		1-4, 6, 7, 9-
^	特許請求の範囲,図面(ファミリーなし)	<u> </u>	15, 19, 21
Y			5, 8, 20, 21
			16-18
A X	   JP, 10-106606, A(三洋電機株式会社)24	4 4日 1998 (24 04 98) 特許	1-4, 6, 7, 9-
^	請求の範囲, 【0058】(ファミリーなし)	1. 1/1. 1/20 (21. 01. 00) , (41)	15, 19
Y	請求の郵西、【0050】(パパパムン)		5, 8, 20, 21
X	EP, 600621, A1 (ROLLS-ROYCE AND ASSO	CTATES I IMITED) 8 6日 1994	1-3, 10, 11
) X	(08.06.94)  全文 & JP,6-239601,A 全	>→ & NS 5/58857 & & DR 693	1 0, 10, 11
		<u>- X</u> & 03, 3430037, A & DL, 033	
	09862, A & CA, 2109655, A		
区 C欄の続	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。
* 引用文献(	のカテゴリー	の日の後に公表された文献	
「A」特に関	連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す	「T」国際出願日又は優先日後に公表	された文献であって
<b>₽</b>		出願と矛盾するものではなく、? の理解のために引用するもの	を明の原理又は理論
	願日前の出願または特許であるが、国際出願日 公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、	当該文献のみで発明
	主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行	の新規性又は進歩性がないと考	えられるもの
	くは他の特別な理由を確立するために引用する	「Y」特に関連のある文献であって、	
	理由を付す)	上の文献との、当業者にとって	
「O」口頭に  「P」国際出	よる開示、使用、展示等に言及する文献 願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	よって進歩性がないと考えられ 「&」同一パテントファミリー文献	ລ <i>60</i> 7
国際調査を完	•	国際調査報告の発送日	02 O 4
HINWINE C. /U	06. 02. 01	20.	02.01
国際調査機関	の名称及びあて先	特許庁審査官(権限のある職員)	4.G 9439
日本	国特許庁 (ISA/JP)	安齋美佐子	<del>,</del>
	郵便番号100-8915 初壬45円区窓が開ニて日 4 来 3 号	個話来号 03-3581-1101	内線 3416



国際出願番号 PCT/JP00/07868

		——————————————————————————————————————	0/0/008	ļ
C (続き). 引用文献の	関連すると認められる文献			٦
カテゴリー*	十一一・バー・バー 人の 即り回がかり戻り るとさは	、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
Y	JP, 52-11058, U(トョタ自動車株式会社) 26.1月 実用新案登録請求の範囲、第5頁第1行-第7頁 (ファミリーなし)	1977 (26 01 77)	5	
Υ .	JP, 60-181588, A(日産自動車) 17. 9月. 1985 ( し)	17. 09. 85) 全文 (ファミリーな	8	
Y	US,5030440,A(Imperial Chemical Industri (09.07.91)全文 & JP,2-69301,A 全文 & 05891,T & GB,8817480,A & DK,363489,A & 3212,A	FP 361648 A1 & DE COO	20	
	· · · · · · · · · · · · · · · · · ·			

## 1. (削除)

2. (補正後)原料ガスから部分酸化を含む反応により水素リッチな改質ガスを生成する改質反応部(6)を有する部分酸化改質装置であって、

円筒状のハウジング(1)と、該ハウジング(1)内に間隔をあけて配置され、 内部に上記改質反応部(6)が設けられた円筒状の隔壁(2)とを備え、

上記隔壁(2)内に、上記改質反応部(6)の出口部(6b)に連通する改質ガス通路(11)が、またハウジング(1)と隔壁(2)との間に、上記改質反応部(6)の入口部(6a)に連通する原料ガス通路(3)がそれぞれ設けられ、

上記改質ガス通路(11)の改質ガスと原料ガス通路(3)の原料ガスとの間で熱交換させる熱交換器(14)が設けられていることを特徴とする部分酸化改質装置。

# 3. (削除)

- 4. (補正後)改質反応部(6)と原料ガス通路(3)との間の熱移動量を制御する熱移動量制御体(10)が設けられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 5. 熱移動量制御体(10)は耐火性の断熱材であることを特徴とする請求項4記載の部分酸化改質装置。
- 6. (削除)
- 7. (削除)
- 8. (削除)

	t b	
		<b>S</b> -
		,

- 9. (補正後)改質反応部(6)、原料ガス通路(3)、改質ガス通路(11)及び熱移動量制御体(10)がハウジング(1)内に一体的に設けられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 10. (補正後) 改質反応部(6) がハニカム構造のモノリス(7) からなるものであることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 11. (削除)
- 12. (削除)
- 13. (補正後) 熱交換器(14)は、原料ガス通路(3)及び改質ガス通路(11)にそれぞれ臨みかつガス流に沿って流れる伝熱フィン(15),(16)を有し、

上記伝熱フィン(15), (16)は、波形に折り曲げられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。

- 14. (補正後)伝熱フィン(15), (16)は周囲壁部に対しろう付けされて固定されていることを特徴とする請求項13記載の部分酸化改質装置。
- 15. (補正後) 伝熱フィン(15), (16) にスリット(17) が形成されていることを特徴とする請求項13又は14記載の部分酸化改質装置。
- 16. (補正後) 熱交換器(14)上流側の原料ガス通路(3)に、改質反応部 (6)又は熱交換器(14)の少なくとも一方を該改質反応部(6)又は熱交換器(14)から離れた状態で取り囲むように配置された略環状空間からなる熱回収部(34)が設けられていることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。

			•	<b>∳</b> -	•
					-
·					
				·	

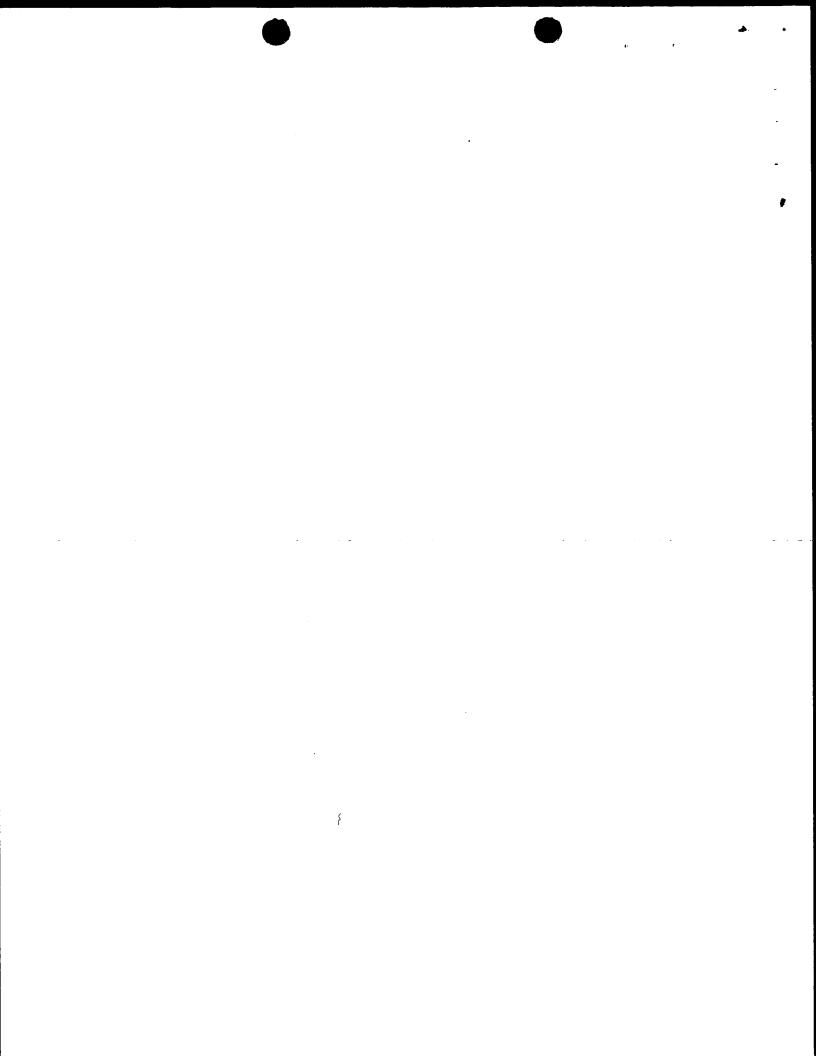
17. \*熱回収部(34)と改質反応部(6)又は熱交換器(14)との間に熱移動量制御体(22)が介在されていることを特徴とする請求項16記載の部分酸化改質装置。

#### 18. (削除)

- 19. 改質反応部(6)の周りに、改質反応部(6)の出口部(6b)と熱交換器(14)とを連通する改質ガス通路(11)が設けられていることを特徴とする 請求項2記載の部分酸化改質装置。
- 20. 改質反応部(6)が第1反応部(43)と、該第1反応部(43)の周りに 設けられ、入口部が第1反応部(43)の出口部に連通する第2反応部(44) とに分割されていて、

上記第1及び第2反応部(43),(44)のガスの流れが逆向きであることを特徴とする請求項2記載の部分酸化改質装置。

# 21. (削除)

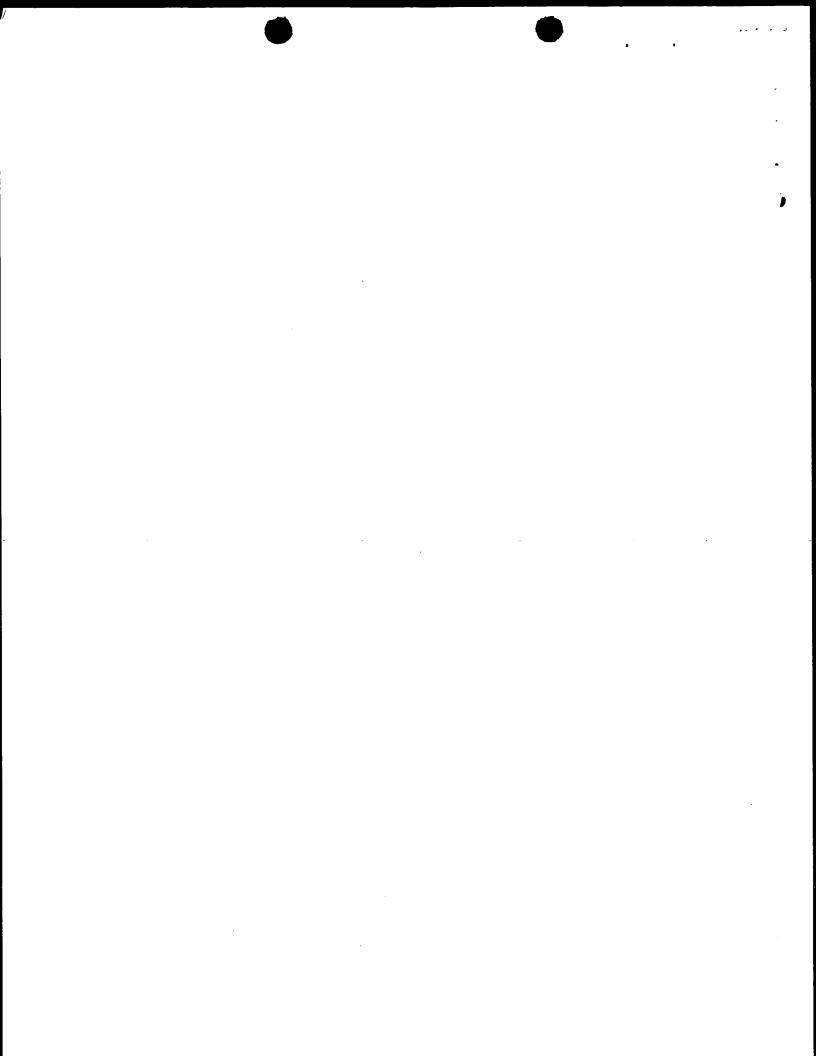


# 条約第19条(1)に基づく説明書

請求の範囲第2項は、部分酸化改質装置が円筒状のハウジングと、その内部に配置された円筒状の隔壁とを備えた2重円管構造であること、隔壁内に改質反応部と、その出口部に連通する改質ガス通路が、またハウジング及び隔壁間に、改質反応部の入口部に連通する原料ガス通路がそれぞれ設けられていること、熱交換器は、これら改質ガス通路の改質ガスと原料ガス通路の原料ガスとの間で熱交換させることを明確にした。

引用例JP59-73403A、JP10-106606A、EP600621A&JP6-239601A&US5458857A&DE693098 62A&CA2109655Aには、改質反応部の周りに原料ガス通路を設けることが示されている。

本発明は、改質ガスと原料ガスとの間で熱交換させる熱交換器を2重円管構造とすることで、改質反応部の熱効率を良好に維持しながら、最もシンプルでコンパクト構造にできる効果が得られる。



#### **CLAIMS**

1. A partial oxidation reformer having a reforming reaction section (6) for producing hydrogen-rich reformed gas from feed gas by reaction including partial oxidation, characterized in that

a feed gas passage (3) through which the feed gas is supplied to the reforming reaction section (6) is provided in the vicinity of the reforming reaction section (6).

2. A partial oxidation reformer having a reforming reaction section (6) for producing hydrogen-rich reformed gas from feed gas by reaction including partial oxidation, characterized in that

a heat exchanger (14) is provided for exchanging heat between the reformed gas in a reformed gas passage (11) communicating with an outlet (6b) of the reforming reaction section (6) and the feed gas in a feed gas passage (3) communicating with an inlet (6a) of the reforming reaction section (6).

- 3. The partial oxidation reformer of Claim 1, characterized in that the reforming reaction section (6) and the feed gas passage (3) are provided integrally in a housing (1).
- 4. The partial oxidation reformer of Claim 1, characterized in that a heat transfer rate control member (10) is provided

10

ENNE IS HE

5

15

25

20

|--|

for controlling the rate of heat transfer between the reforming reaction section (6) and the feed gas passage (3).

- 5. The partial oxidation reformer of Claim 4, characterized
  in that the heat transfer rate control member (10) is of fire-resistant thermal insulant.
  - 6. The partial oxidation reformer of Claim 1, characterized in that
- the feed gas passage (3) is provided in the vicinity of a reformed gas passage (11) communicating with an outlet (6b) of the reforming reaction section (6), and
  - a heat exchanger (14) is provided for exchanging heat between the feed gas in the feed gas passage (3) and the reformed gas in the reformed gas passage (11).

15

20

- 7. The partial oxidation reformer of Claim 2 or 6, characterized in that the heat exchanger (14) includes heat transfer fins (15), (16) that are presented to the feed gas passage (3) and the reformed gas passage (11), respectively, and flow along respective gas flows in the feed and reformed gas passages.
- 8. The partial oxidation reformer of Claim 2 or 6, characterized in that the heat exchanger (14) includes porous materials (24), (25) located in the feed gas passage (3) and the reformed gas passage (11), respectively.

_		'	
	•		

- 9. The partial oxidation reformer of Claim 6, characterized in that the reforming reaction section (6), the feed gas passage (3), the reformed gas passage (11) and the heat transfer rate control member (10) are provided integrally in a housing (1).
- 10. The partial oxidation reformer of Claim 1 or 2, characterized in that the reforming reaction section (6) is formed of a monolith (7) with a honeycomb structure.
  - 11. The partial oxidation reformer of Claim 9 or 10, characterized in that the feed gas passage (3) includes a mixer for mixing components of the feed gas.

· 15

20

- 12. The partial oxidation reformer of Claim 2 or 6, characterized in that the heat exchanger (14) is a parallel flow heat exchanger in which the feed gas in the feed gas passage (3) and the reformed gas in the reformed gas passage (11) flow in the same direction from inlet to outlet.
- 13. The partial oxidation reformer of Claim 7, characterized in that the heat transfer fins (15), (16) are bent in a corrugated shape.

25

14. The partial oxidation reformer of Claim 7 or 13, characterized in that the heat transfer fins (15), (16) are

	•	

fixed to surrounding walls by brazing.

15. The partial oxidation reformer of Claim 7, 13 or 14, characterized in that the heat transfer fins (15), (16) are each formed with slits (17).

16. The partial oxidation reformer of Claim 2 or 6, characterized in that the feed gas passage (3) is provided at a portion thereof upstream from the heat exchanger (14) with a heat recovery section (34) formed of a substantially annular space which is located away from the reforming reaction section (6) or the heat exchanger (14) to surround at least one of the reforming reaction section (6) and the heat exchanger (14).

· 15

10

5

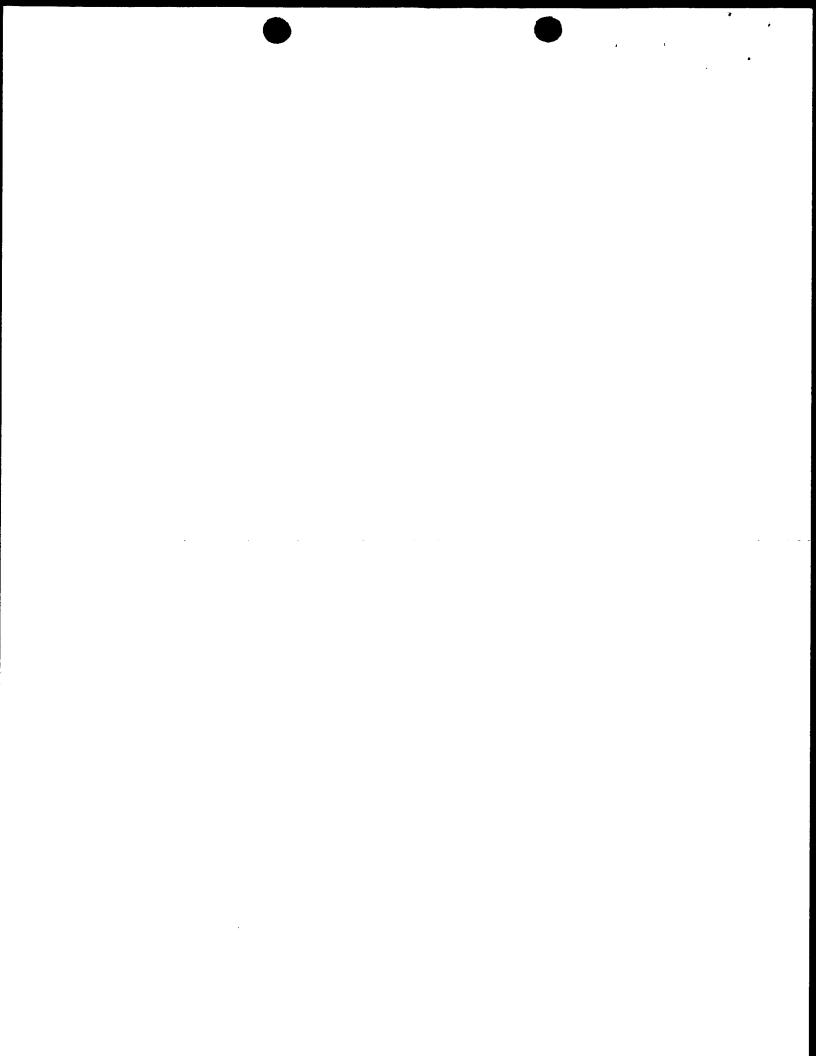
17. The partial oxidation reformer of Claim 16, characterized in that a heat transfer rate control member (22) is interposed between the heat recovery section (34) and the reforming reaction section (6) or the heat exchanger (14).

20

18. The partial oxidation reformer of Claim 16 or 17, characterized in that the heat recovery section (34) and the heat exchanger (14) are communicated with each other through a single or plurality of communication passages (32).

25

19. The partial oxidation reformer of Claim 2, characterized in that the reformed gas passage (11) may be provided in the



vicinity of the reforming reaction section (6) to communicate the outlet (6b) of the reforming reaction section (6) with the heat exchanger (14) therethrough.

5 20. The partial oxidation reformer of Claim 2, characterized in that

the reforming reaction section (6) is divided into a first reaction section (43) and a second reaction section (44), the second reaction section (44) being provided in the vicinity of the first reaction section (43) to communicate at an inlet thereof with an outlet of the first reaction section (43), and

the first and second reaction sections (43), (44) have gas flows in opposite directions.

· 15

10

21. The partial oxidation reformer of any one of Claims 1 to 20, characterized in that heating means (20) is provided for heating the feed gas at start-up.

		• .	b.	,
				•
·				